

Spectroscopie large bande de systèmes de spins via l'inductance cinétique d'un résonateur supraconducteur

par

Grégory Brookes

Mémoire présenté au département de physique
en vue de l'obtention du grade de maître ès sciences (M.Sc.)

FACULTÉ des SCIENCES
UNIVERSITÉ de SHERBROOKE

Sherbrooke, Québec, Canada, 7 janvier 2020

Le 7 janvier 2020

le jury a accepté le mémoire de Monsieur Grégory Brookes dans sa version finale.

Membres du jury

Professeur Michel Pioro-Ladrière
Directeur de recherche
Département de physique

Professeur Alexandre Blais
Membre interne
Département de physique

Professeure Éva Dupont-Ferrier
Présidente rapporteuse
Département de physique

À mes parents et amis

Sommaire

Les méthodes de résonances magnétiques sont de puissants outils de caractérisations de matériaux, solutions et autres objets comportant des moments magnétiques. De la pharmaceutique aux applications médicales et en passant par les matériaux quantiques, ces méthodes sont utilisées dans une vaste sélection de domaines technoscientifiques afin de caractériser les constituants, les propriétés ou encore de caractériser les phénomènes effectant les moments magnétiques d'un échantillon.

Ce mémoire aborde la résonance paramagnétique électronique (RPE) comme outil de caractérisation et d'identification de défauts quantiques dans le diamant comme exemple de matériau quantique. Plus spécifiquement, il porte sur la preuve de concept et la caractérisation d'un détecteur RPE dont le couplage cavité-spins est fondé sur la détection de la polarisation d'un ensemble de spins. Par conséquent, ce nouveau couplage permet la prise de mesure RPE large bande entraînant une polyvalence expérimentale accrue. Par exemple, ce système permet de choisir le champ magnétique et la fréquence d'excitation d'une expérience RPE.

Ce détecteur, composé uniquement d'un résonateur de type guide d'ondes coplanaire à grande inductance cinétique, a permis la démonstration d'un signal spectroscopique RPE au-delà de 2.4 GHz hors de la bande du résonateur, ce qui est inédit pour tout autre système RPE en cavité traditionnel.

Similairement, ces mesures ont permis la reconstruction du diagramme de transition électronique d'un diamant sur une plage de 5.4 GHz autour de la fréquence du résonateur à 5 GHz. Ainsi, deux défauts quantiques ont été identifiés et caractérisés, soit les centres azote-lacune (centres NV) et les centres azotés P1.

Cette technologie offre ainsi une opportunité de recherche dans le domaine de matériaux quantiques, où les limitations des systèmes spectroscopiques RPE en cavité font obstacle à la caractérisation rapide d'échantillons.

Remerciements

Avant de ce lancer dans le vif du sujet, j'aimerais prendre le temps de remercier tous ceux qui ont continué de près ou de loin au développement du projet et pour m'avoir accompagné au travers de l'aventure.

Tout d'abord, j'aimerais remercier Michel Pioro-Ladrière pour de nombreuses discussions plus intéressantes les unes que les autres et aussi pour toute l'aide apportée au plan académique ainsi qu'au plan entrepreneurial du projet. Mais surtout, merci de m'avoir offert l'opportunité de découvrir la physique au sein du groupe lors d'un premier stage lors de l'été 2016, où il m'a transmis la passion de la physique et la fébrilité accompagnant les découvertes ; merci aussi pour le deuxième stage l'année suivante où le projet a vu le jour me permettant ensuite de poursuivre les explorations lors de cette maîtrise. De plus, l'enthousiasme de Michel a permis le développement d'opportunités les plus excitantes les unes que les autres.

Merci à Dany Lachance-Quirion et David Roy Guy pour d'avoir partagé de merveilleux projet lors de l'été 2017. Ils m'ont tous deux énormément appris sur plusieurs aspects de la physique expérimentale : l'usage général des instruments de laboratoire, les méthodologies de mesures, l'analyse de données... Dany et David ont toujours été présents pour répondre à mes questions. Ainsi, je voulais souligner leur patience et leur dévouement à mon apprentissage.

Merci à Jérôme Bourassa pour le support théorique tout au long du projet. Merci à lui aussi d'agir comme représentant de l'équipe de recherche pour les discussions légales avec Transfert Tech Sherbrooke pour le transfert technologique et les agents de brevets.

Merci à tous les stagiaires pour les démarches théoriques. En outre, merci à Léo Desormier pour les simulations d'éléments finis de champ magnétique créés par un ensemble de spins, et merci à Vincent Bonneau pour les dérivations analytiques de l'effet d'un changement d'inductance cinétique local dans un résonateur unidimensionnel. De plus, j'aimerais remercier Raphaël Lafond-Mercier pour d'excellentes simulations de transition électronique d'ensemble de spins pour un champ magnétique d'orientation arbitraire en plus du raffinement des

travaux de Léo ainsi que pour avoir modélisé les modes magnétiques du résonateur et sa sensibilité en champ magnétique. Merci à David Tran d’avoir enchéri les travaux de Vincent en dérivant un modèle analytique des modes magnétiques du résonateur lors d’une excitation hors résonante. Finalement, merci à Ulrich Martel d’avoir enchéri les efforts de simulation afin de calculer le couplage dipolaire magnétique entre le résonateur et l’ensemble de spins.

De plus, merci à Michael Lacerte et Christian Lupien pour leur incroyable sagesse et expertise pour tout ce qui a trait à l’instrumentation, de logiciels, des montages expérimentaux et de la fabrication de pièces. Bref, merci pour leur expertise expérimentale et logistique.

Merci à tous les membres du groupe de recherche de Michel, lesquels ont été extrêmement patients lors de ma monopolisation des appareils. Merci pour de nombreuses discussions ayant permis de développement du projet. Un merci particulier à Sara Turcotte pour m’avoir supporté dans les hauts et les bas autant lors de la recherche qu’ailleurs.

Merci entre autres à la clique d’escalade : Charles-Antoine Viens, Sara Turcotte, Alexandre Choquette, Jessica Gagnon, Claude Rorhbach, Marc-Antoine Roux et Geneviève Le Pabic pour m’avoir permis et parfois, forcé à suivre un mode de vie plus équilibré.

Finalement, merci à ma famille d’avoir encouragé ma curiosité et surtout, merci à ma partenaire Geneviève Le Pabic pour avoir cru en moi et m’avoir épaulé tout au long de cette aventure.

Table des matières

Sommaire	ii
Introduction	1
1 Résonance magnétique	4
1.1 Principes de base	5
1.1.1 Le moment magnétique	6
1.1.2 L'effet Zeeman	6
1.1.3 Absorption et règles de sélection	8
1.2 Spectroscopie par résonance paramagnétique électronique	9
1.3 Caractéristiques du signal de résonance paramagnétique électronique continue	12
1.3.1 Modèle de Bloch	12
1.3.2 Temps de relaxation	15
1.3.3 Largeur de raie	16
2 Résonateur supraconducteur	18
2.1 Supraconductivité	18
2.1.1 Modèles considérés	19
2.1.2 Champs critiques	22
2.1.3 Considérations de vortex	23
2.2 Résonateur supraconducteur de type guide d'ondes coplanaire	27
2.2.1 Description des propriétés d'un guide d'ondes coplanaire	28
2.2.2 Figures de mérites	31
3 Résonateur comme transducteur magnétique	33
3.1 Description du mode magnétique	33
3.2 Réponse magnétométrique	35
3.2.1 Effet de vortex	36
3.2.2 Signal de résonance paramagnétique électronique magnétométrique .	38

3.3	Réponse dispersive transverse	39
3.3.1	Signal de résonance paramagnétique électronique dispersif	40
4	Systèmes utilisés	42
4.1	Ensembles de spins étudiés	42
4.1.1	Centres P1	43
4.1.2	Centres NV	44
4.2	Description du dispositif	47
4.2.1	Résonateur	47
4.2.2	Porte-échantillon	48
4.3	Montage expérimental	49
4.3.1	Système cryogénique et sources magnétiques	49
4.3.2	Électronique	52
5	Réalisation expérimentale	55
5.1	Caractérisation	55
5.1.1	Environnement électromagnétique	56
5.1.2	Réponse en champ magnétique	58
5.1.3	Caractérisation de la bobine secondaire	60
5.2	Résonance paramagnétique électronique résonante	62
5.2.1	Caractérisation résonante de l'ensemble de spins	64
5.2.2	Détermination de l'orientation de l'ensemble de spins	66
5.2.3	Caractérisation du couplage dispersif	67
5.3	Résonance paramagnétique électronique non résonante	69
5.3.1	Démonstration de détection hors résonance	70
5.3.2	Caractérisation du détecteur	73
5.3.3	Spectre très large bande	77
6	Développement et perspectives	81
6.1	Considérations pour développement futur	81
6.1.1	Système et mesure	81
6.1.2	Résonateur	83
6.2	Perspectives	85
	Conclusion	86
A	Modélisation d'un guide d'ondes coplanaire	89
A.1	Description de la réponse du résonateur	90

<i>TABLE DES MATIÈRES</i>	viii
A.2 Effet du champ magnétique sur une mince couche supraconductrice : densité de courant non uniforme	92
Bibliographie	95

Liste des tableaux

4.2	Liste de composantes utilisées lors des expériences, où chaque colonne représente une ligne dans le réfrigérateur. Le signal spectroscopique et EPR apportent les signaux au résonateur tandis que la ligne d'amplification retourne le signal aux instruments de détections.	54
5.1	Spectre de transmission du résonateur : résultats de régression.	57
5.2	Description de la réponse du résonateur exposé au champ magnétique B_a : résultats de régression.	59
5.3	Description de la réponse du résonateur exposé au champ magnétique B_b : résultats de régression.	60
5.4	Susceptibilité magnétique d'un ensemble de spins par une mesure dispersive : résultats de régression.	64
5.5	Caractérisation de l'ensemble de spins par la modulation du facteur de qualité : résultats de régression.	66
5.6	Accordement de fréquence de résonance pour la détermination de l'orientation de l'ensemble de spins : résultats de régression.	67
5.7	Largeur de bande du résonateur en résonance avec un ensemble de spins : résultats de régression	68
5.8	Spectres RPE large bande : résultats de régression.	74
5.9	Spectre très large bande : résultats de régression.	80

Table des figures

1.1	Séparation d'énergie Zeeman et condition de résonance pour une résonance électronique, $ 0\rangle$ et $ 1\rangle$ correspondent aux états de spins électroniques $m_s = -1/2$ et $m_s = 1/2$	7
1.2	Montage de détection en réflexion d'un résonateur. Usuellement, le transducteur prend la forme d'une cavité de haut facteur de qualité. Le couplage entre le transducteur et l'échantillon étudié est visuellement représenté par deux lignes parallèles.	11
1.3	Précession d'un moment magnétique (spin électronique), lorsqu'exposé à un champ magnétique B. Figure tiré de Assenhein [1].	13
1.4	Systèmes d'axes utilisés pour définir les axes de magnétisation. Le système d'axe ϕ tourne à la fréquence ω du champ d'excitation B_1 . Figure tirée de Weil [2].	14
2.1	Représentation visuelle d'un vortex permettant au champ perpendiculaire de transpercer le film supraconducteur. Figure inspirée de Snarskii [3].	24
2.2	Représentation de flux sautant d'un site de site en site. Énergie thermique de vortex (a) et ajout des forces associés à la distribution de courant ou un gradient de champ magnétique, favorisant le glissement de flux (b). Figure tirée de Tinkham [4].	26
2.3	Section d'un guide d'ondes coplanaire	28
2.4	Cartographie conforme d'un guide d'ondes coplanaire d'épaisseur nulle (a) vers un condensateur à plaque parallèle (b). Figure tirée de Gao [5].	29
2.5	a) Représentation RLC du résonateur couplé aux lignes d'entrée et de sortie, b) Circuit équivalent composé de circuits Norton à l'entrée et à la sortie du résonateur. Figure tirée de Goppl [6].	32

3.1	Champ magnétique généré par un résonateur de type guide d'ondes coplanaire. a) Coupe longitudinale illustrant le champ généré par le premier mode b) coupe transverse.	34
3.2	Changement d'axes relatif au champ magnétique appliqué afin de calculer λ_{eff} . Figure tirée de Clem et Coffrey [7].	37
3.3	Amplification du signal de magnétisation par l'application d'un biais illustré par le déplacement du signal d'entrée (magnétisation) vers la droite (vert à bleu).	39
4.1	a) Représentation de la structure cristalline d'un centre P1 b) Diagramme d'un signal RPE typique, illustrant le couplage hyperfin A entre le centre P1 et le moment nucléaire de l'azote N^{14} substitutionnel.	43
4.2	a) Représentation de la structure cristalline des quatre orientations possibles de centre NV b) Diagramme d'un signal RPE typique, illustrant la séparation à champ nul D entre l'état $m_s = 0$ et les états $m_s = \pm 1$ tandis que le paramètre $2E$ est la séparation à champ nul entre les deux niveaux $m_s = \pm 1$	45
4.3	Schéma du résonateur utilisé	47
4.4	a) Image du résonateur sur le PCB et la plaque de cuivre, recouvert d'un boîtier. Note, seuls les ports RF du centre sont connectés, les autres sont recouverts d'une feuille d'aluminium. b) Intérieur du couvercle c) résonateur, diamant et PCB sur une plaque de cuivre [8].	49
4.5	Montage expérimental où les atténuateurs et sources de champ magnétique ne sont pas représentés.	53
5.1	Résonance du résonateur et conséquences de l'environnement électromagnétique sur le signal transmission présenté sous forme de bruit et résonances parasites (a). Note : les noms de fichiers de données bruts sont annoté au bas des figures.	57
5.2	Description de la réponse du résonateur exposé au champ magnétique B_a créée par la bobine principale.	59
5.3	Description de la réponse du résonateur exposé au champ magnétique B_b créée par la bobine secondaire : principalement, perpendiculaire au résonateur. . .	60
5.4	Régressions de la réponse du résonateur sous l'influence d'un champ magnétique Zeeman B_a ou un champ créé par le courant I_b de la bobine secondaire, permettant ainsi de déterminer la constante de champ de cette dernière. Seulement les parties quadratiques sont utilisées.	61
5.5	Compensation du désalignement du champ Zeeman B_a par l'application de champ magnétique perpendiculaire B_b	62

5.6	Description de la susceptibilité magnétique d'un ensemble de spins par une mesure dispersive par le biais d'un résonateur supraconducteur. La résonance étudiée est la transition $ g\rangle \rightarrow e\rangle$ des centres NV dans le diamant.	63
5.7	Caractérisation de l'ensemble de spins par la modulation du facteur de qualité (soit la partie imaginaire de la susceptibilité magnétique).	64
5.8	Signaux RPE résonnant pour les transitions de centres NV $ g\rangle \rightarrow e\rangle$ et centres P1, recueillis à différentes fréquences de résonances permises par l'application de différents champs magnétiques secondaires B_b	68
5.9	Régression de la largeur de bande du résonateur en résonance avec un ensemble de spins.	69
5.10	Illustration d'une mesure typique où l'amplitude de résonance magnétique est l'amplitude de la régression exponentielle. L'exemple présenté est une relaxation en résonance avec la transition de centres NV A à $B_a = 155$ mT. Les valeurs de temps de relaxation T_1 et l'amplitude de résonance extraite sont respectivement 126 s et 214 kHz.	71
5.11	Spectres RPE large bande $B_a = 115$ mT.	72
5.12	Dépendance de l'amplitude du signal RPE en puissance d'excitation B_1 . . .	75
5.13	Démonstration d'une détection de polarisation de l'ensemble de spins. . . .	76
5.14	Dépendance de l'amplitude du signal RPE en champ perpendiculaire. . . .	78
5.15	Spectre très large bande permettant de suivre les transitions électroniques des centres NV et centres P1.	79
A.1	Circuit équivalent d'un guide d'ondes complaire selon le modèle du télégraphe. .	89
A.2	Exemple de la transmission d'un résonateur et pertes d'insertion.	91
A.3	Schéma représentant la géométrie étudiée pour calculer l'inductance mutuelle de deux éléments discrets d'un film conducteur, Figure tirée de Hoer et Love [9].	94

Introduction

Le succès fulgurant des domaines de Hautes Technologies est attribuable à la simple observation que le développement technique, le développement théorique et le développement technologique forment une boucle d'amplification. En effet, ces technologies permettent le développement de nouveaux outils et méthodologies, lesquels permettent le peaufinement des connaissances scientifiques pour un progrès autant théorique que pratique. Ainsi, ces nouvelles connaissances mènent vers le développement de nouvelles technologies.

Une partie intéressante de ce phénomène est l'importance accordée au développement d'outils innovateurs afin de remédier aux contraintes de technologies futures. Un exemple d'effort déployé est la récente montée en popularité, au sein des communautés scientifiques, gouvernementales et industrielles, du développement d'outils quantiques dans le domaine de la métrologie (senseurs magnétiques [10, 11], compteurs de photons [12, 13], etc.), des télécommunications [14, 15], d'imagerie [16, 17], et même, récemment, le développement d'ordinateurs quantiques et les outils nécessaires à son fonctionnement [18–20].

Ce mémoire, initialement issu d'un outil nécessaire à la réalisation d'une solution d'information quantique, portera sur l'exploration de cette technologie comme outil métrologique. En effet, ce projet est une application dérivée du développement d'un bus d'information quantique au travers duquel l'information de deux doubles boîtes quantiques sont échangés ou manipulées, dans l'objectif de réaliser un couplage longue portée entre deux sous-systèmes d'un ordinateur quantique [8].

Ainsi, le dispositif discuté au long de ce mémoire comprend uniquement un résonateur supraconducteur. Il a été réutilisé afin de recréer une expérience où le couplage entre un résonateur et un ensemble de spins est étudié via une expérience de résonance paramagnétique électronique [21]. Bien que les résultats obtenus lors de cette expérience n'aient pas été de la qualité désirée, le dispositif a démontré un phénomène inattendu et inexpliqué, digne d'une exploration détaillée.

Une brève première exploration de ce nouveau phénomène fut complétée lors de l'été 2017 par Dany Lachance-Quirion, David Roy-Gay, Jérôme Bourassa et Gregory Brookes. Les résultats furent compilés dans la thèse de ce premier [8] ainsi que dans un dépôt d'un brevet provisoire au nom de l'équipe en question et du superviseur Michel Pioro-Ladrière (brevet provisoire No 62716456).

Ainsi, ce document porte sur la deuxième partie de l'exploration, portant sur la confirmation du phénomène décrit, de ses propriétés ainsi que son applicabilité à l'instrumentation de résonance magnétique. Un objectif secondaire du travail est l'identification des limitations, optimisations et avenues de développements futurs. Ainsi, ce document est à la fois un mémoire scientifique et un rapport technique où des données préliminaires et une première théorie permettant le développement d'applications futures sont présentées.

Il est donc important de noter qu'un effort particulier est accordé aux explications des phénomènes nécessaires à la compréhension des résultats présentés ainsi que de la conception d'une technologie en découlant. Par conséquent, bien que certains éléments de théories ne sont que mentionnés lors de la description du système et des phénomènes observés, ceux-ci sont conservés par souci de référence lors de conception future. De plus, ces éléments servent de rappel des limitations de fabrication et d'applications, de guide de conception ainsi que de point de départ pour une première itération d'un produit dérivé. De plus, plusieurs explications théoriques et expérimentales sont présentées afin de fournir aux membres d'une future équipe de conception, provenant de formations différentes, les connaissances nécessaires pour poursuivre le projet. Le public cible est ainsi autant les experts du domaine de la physique supraconductrice et les spécialistes de l'instrumentation de résonance magnétique que les ingénieurs et technologues nécessaires au développement d'une future technologie.

Plan du mémoire

Le mémoire est présenté en deux parties théoriques majeures, suivi d'une explication des systèmes étudiés et des systèmes requis, d'une présentation des résultats obtenus et finalement, une description des avenues futures de la technologie.

La première partie théorique est une courte section portant sur la résonance magnétique couvrant les éléments de bases : une description des requis fondamentaux de la conception d'un outil de spectroscopie de résonance magnétique ainsi qu'un modèle phénoménologique des observations typiques de ces instruments. Ainsi, ce chapitre offre la base pour la compréhension du système utilisé, et du fait, est limité pour la conception de technologies de résonance magnétiques.

La seconde partie théorique se rapporte à tous les aspects du résonateur supraconducteur utilisé comme transducteur. Ainsi, un survol des différentes théories de supraconductivité est présenté afin de fournir au lecteur une compréhension de base sur ce domaine. Par la suite, une description des modèles et des propriétés électroniques du dispositif sont présentées comme point de départ d'une optimisation future. Finalement, certains modèles permettant la description du dispositif comme outil de résonance magnétique sont présentés tels que la modélisation du champ magnétique produit par l'application d'un voltage aux bornes du dispositif, ainsi que la dépendance de celui-ci en champ magnétique. De plus, une théorie computationnelle numérique est discutée par souci d'exposition puisque par la complexité de l'environnement électromagnétique considéré pour la réalisation de ce projet, il est raisonnable de supposer que la conception de technologies compétitives devra être complétée par simulations numériques.

Le système étudié fait référence à l'échantillon d'ensemble des spins utilisé : sa fabrication, l'implémentation de spins ainsi que la description des différents ensembles observés (centre NV dans le diamant et les centres C de type P1). Cette section comprend aussi la description du montage expérimental utilisé, fournissant ainsi les informations nécessaires pour recréer ou itérer le montage et les méthodes utilisées.

La présentation de données expérimentales contient les procédures de caractérisation du détecteur utilisé ainsi que des ensembles de spins, suivi d'une série de mesure explorant les propriétés du couplage décrit.

Finalement, des suggestions d'avenues de développements futurs sont présentées à la section intitulée développement et perspectives. Celle-ci contient aussi la vision de l'auteur sur les applications de la technologie présentée ainsi que son impact dans la communauté techno-scientifique.

Chapitre 1

Résonance magnétique

Le terme résonance magnétique réfère à une classe de méthodes expérimentales permettant l'observation de l'interaction entre un champ électromagnétique et un moment magnétique. Ces méthodes permettent la caractérisation d'un spécimen par l'identification de ses constituants par leurs concertations, distributions, températures, environnements ainsi que leurs propriétés électromagnétiques.

Plusieurs réalisations de résonances magnétiques ont été développées dont chacune offre leurs spécificités et leurs expertises :

- La résonance magnétique nucléaire (RMN) s'intéresse aux noyaux nucléaires du spécimen étudié et surtout leurs interactions avec leurs environnements. Un exemple d'application de cette technologie, dans les domaines pharmacologiques et biomédicaux, est la modélisation structurale de molécules, d'acides aminés et de protéines [22, 23].
- L'imagerie par résonance magnétique (IRM), soit une réalisation populaire de la RMN, est fréquemment utilisée dans le domaine médical. Cet examen non invasif permet aux professionnels de la santé de détecter la nature et la forme de différents tissus dans le corps sans aucune intervention chirurgicale [24].
- La résonance paramagnétique électronique (RPE) s'intéresse au moment magnétique dipolaire électronique de radicaux libres, de métaux de transitions et de défauts cristallins ainsi que leurs environnements. Ainsi, cette technique permet de déterminer la structure d'une molécule et son évolution lors d'une réaction chimique, laquelle peut causer une altération de sa structure. Plus récemment, des applications d'informations quantiques ont été développées où les premiers pas vers une mémoire quantique ont été démontrés par la réalisation expérimentale de contrôle cohérent d'ensemble de spins [1, 2].

- o La résonance ferromagnétique (RFM) est une réalisation spécifique de l'EPR où l'aimantation d'ondes de spins ainsi que la dynamique d'ensemble de spins sont étudiées. Cette réalisation est d'un intérêt particulier pour le développement de technologies spintronique et magnonique, soit des composantes électroniques dont le fonctionnement repose sur des effets de spin électronique ou magnétique, tels des senseurs et mémoires magnétiques [25, 26].
- o La Microscopie à force de résonance magnétique (MFRM) est une technique combinant l'IRM et la microscopie à force atomique (MFA) où la vibration mécanique d'un levier magnétique est mesurée lorsqu'il ressent une attraction d'un moment magnétique nucléaire de l'échantillon. Cette technique d'imagerie offre une résolution jusqu'à huit ordres de grandeur plus grande que l'IRM, permettant jusqu'à l'imagerie tridimensionnelle d'un virus [27].

Les sections suivantes contiennent les définitions et une explication simplifiées des éléments de théories nécessaires pour décrire le comportement de moment magnétique, des systèmes traditionnels de résonances magnétiques électroniques ainsi que les systèmes présentés dans ce projet.

1.1 Principes de base

La résonance magnétique est avant tout une méthode de spectroscopie où un rayonnement électromagnétique est utilisé pour sonder l'excitation de moments dipolaires (ou supérieur) magnétiques. Ces moments se couplent à la composante magnétique oscillante du rayonnement \mathbf{B}_1 où un seul quanta de radiation interagit avec un seul moment. Lorsque l'énergie de ce photon $\hbar\omega$ correspond à la séparation entre deux niveaux d'énergie du moment magnétique, celui-ci est absorbé.

Considérant une généralité comprenant tous les types de moments magnétiques quantiques, les principes fondamentaux nécessaires à la résonance magnétique sont discutés. Le concept de moment magnétique est initialement présenté par une description intuitive, suivi par une description simplifiée de leur comportement, lorsqu'exposé à des champs magnétiques. Finalement, les limitations fondamentales de la réponse de ces moments magnétiques sont présentées par le biais d'un exemple.

1.1.1 Le moment magnétique

Le moment magnétique d'une particule, d'une molécule ou de tout autre système est intimement relié à son moment angulaire. Pour définir cette relation, imaginons une boucle de rayon r $\hat{\mathbf{r}} = \hat{\mathbf{z}}$ contenant un courant I ; situation analogue à une particule chargée circulant dans cette boucle :

$$\boldsymbol{\mu} = \oint_{\Omega} I d\mathbf{S} = I\pi r^2 \hat{\mathbf{z}} = \frac{qv}{2\pi r} \pi r^2 \hat{\mathbf{z}} = \frac{q}{2m} mvr \hat{\mathbf{z}} = \gamma \mathbf{J} \quad (1.1)$$

où $\mathbf{J} = mvr\hat{\mathbf{z}}$ est le moment angulaire orbital de la particule chargée $\gamma = \frac{q}{2m}$ est le rapport gyromagnétique convertissant le moment angulaire en moment magnétique. Généralement, le rapport gyromagnétique $\gamma = \frac{gq}{2m}$ contient un facteur de correction Zeeman (g) provenant de la perturbation des niveaux d'énergies quantiques lorsqu'une particule chargée est exposée à un faible champ magnétique. Dans le cas le plus général, ce facteur g est anisotrope et est représenté par une matrice. Finalement, dans le domaine de la mécanique quantique, où le moment angulaire est discrétisé, le moment magnétique s'écrit :

$$\boldsymbol{\mu} = \frac{\beta}{\hbar} \mathbf{g} \hat{\mathbf{J}} \quad (1.2)$$

où $\beta = \frac{q\hbar}{2m}$ est le magnéton de Bohr $-\mu_B$ dans le cas d'un électron et où $\hat{\mathbf{J}} = \hat{\mathbf{L}} + \hat{\mathbf{S}}$ est le moment angulaire total comprenant le moment angulaire total et le moment angulaire associé au spin électronique. Similairement, $\hat{\mathbf{J}} = \hat{\mathbf{I}}$ pour un noyau atomique où $\hat{\mathbf{I}}$ est la contribution du spin nucléaire.

1.1.2 L'effet Zeeman

Lorsqu'un moment magnétique est soumis à un champ magnétique, celui-ci gagne une énergie potentielle magnétique :

$$U = -\boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{B} \quad (1.3)$$

Considérons le cas d'un électron libre dans un champ magnétique statique, où seul le spin contribue au moment angulaire : le moment magnétique $\boldsymbol{\mu}$ est substitué par $-g\mu_B \hat{\mathbf{S}}$, avec g scalaire puisque l'électron ne ressent aucun autre environnement que celui créé par le

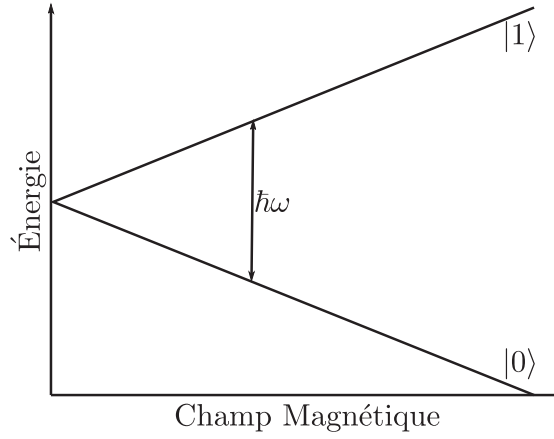


Figure 1.1 Séparation d'énergie Zeeman et condition de résonance pour une résonance électronique, $|0\rangle$ et $|1\rangle$ correspondent aux états de spins électroniques $m_s = -1/2$ et $m_s = 1/2$.

champ appliqué. L'Hamiltonien de la particule acquiert donc un terme Zeeman décrivant le potentiel magnétique :

$$\mathcal{H}_S = -g\mu_B \hat{\mathbf{B}} \cdot \hat{\mathbf{S}} \quad (1.4)$$

Ainsi, les énergies associées aux états de spins $S = \pm \frac{\hbar}{2}$ de l'électron auront une séparation énergétique $\Delta U = g\mu_B B$ ($B = \|\vec{B}\|$) ; leur dégénérescence sera levée et ainsi permettra leur détection par spectroscopie de résonance magnétique telle qu'illustrée à la figure 1.1.

Généralement, d'autres contributions seront considérées telles que le champ magnétique local généré par d'autres moments magnétiques voisins, des contraintes dans le spécimen, ainsi que des contributions au moment angulaire additionnel telles que le couplage spin-orbite. De plus, le principe d'exclusion de Pauli indique qu'au plus deux fermions, de spin opposé, peuvent occuper un même niveau d'énergie. Ainsi, les moments magnétiques opposés de deux électrons occupant la même orbitale spatiale s'annulent. Conséquemment, seules les orbitales incomplètes sont observables par spectroscopie de résonance magnétique.

La clé de la résonance magnétique est la dépendance en champ magnétique des niveaux d'énergies de particules, molécules ou tout autre moment magnétique. Le terme résonance est adéquat puisque la transition entre deux niveaux d'énergie Zeeman, induite par la composante magnétique \mathbf{B}_1 d'un rayonnement, est uniquement possible lorsque l'énergie du photon d'excitation correspond à la différence énergétique entre deux niveaux du moment magnétique :

$$\Delta U = g\mu_B B = \hbar\omega \quad (1.5)$$

1.1.3 Absorption et règles de sélection

La seconde condition à l'excitation de transition entre niveaux d'énergie Zeeman est la conservation du moment angulaire. Bien que les règles de sélections de transitions soient propres au système étudié, beaucoup s'apparentent aux transitions nucléaires ou transitions électroniques de l'atome d'hydrogène. Considérons ce dernier sous l'approximation d'interaction négligeable entre spins nucléaires et spins électroniques :

$$\mathcal{H}_{\text{spin}} = g\mu_B \mathbf{B} \cdot \hat{\mathbf{S}} + A_o \hat{\mathbf{S}} \cdot \hat{\mathbf{I}} - g_n \beta_n \mathbf{B} \cdot \hat{\mathbf{I}} \quad (1.6)$$

La base de vecteurs choisie est $|m_S, m_I\rangle$ où les indices représentent respectivement les nombres quantiques du spin électronique et le spin nucléaire. Considérons l'approximation où cette base représente les vecteurs propres de l'Hamiltonien, soit lorsque $g\beta B \gg A_o$. Ainsi, lorsque l'atome est sujet à un champ magnétique oscillant d'amplitude \mathbf{B}_1 , le terme Zeeman est :

$$\mathcal{H}_1 = -\hat{\boldsymbol{\mu}} \cdot \mathbf{B}_1 = (g_e \beta_e \hat{\mathbf{S}} - g_n \beta_n \hat{\mathbf{I}}) \cdot \mathbf{B}_1 \quad (1.7)$$

Négligeons ensuite le terme Zeeman nucléaire et considérons le cas du champ magnétique d'excitation appliqué perpendiculairement au champ magnétique statique $\mathbf{B}_1 \perp \mathbf{B} \parallel \hat{\mathbf{z}}$: $\langle m_S, m_I | \mathcal{H}_1 | m'_S, m'_I \rangle = g_e \beta_e B_1 \langle m_S, m_I | \hat{S}_x | m'_S, m'_I \rangle = g_e \beta_e B_1 m_S \langle m_S | \hat{S}_x | m'_S \rangle \langle m_I | m'_I \rangle$. Considérons aussi le cas du champ magnétique d'excitation appliqué parallèlement au champ magnétique statique $\mathbf{B}_1 \parallel \mathbf{B} \parallel \hat{\mathbf{z}}$: $\langle m_S, m_I | \mathcal{H}_1 | m'_S, m'_I \rangle = g_e \beta_e B_1 \langle m_S, m_I | \hat{S}_z | m'_S, m'_I \rangle = g_e \beta_e B_1 m_S \langle m_S | m'_S \rangle \langle m_I | m'_I \rangle$.

Ainsi, pour le champ perpendiculaire, la propriété d'orthogonalité des vecteurs propres détermine que seuls les éléments de matrice non nuls apparaissent lorsque $m'_S = m'_S \pm 1$ et $m_I = m'_I$. Similairement, pour le champ parallèle, ces conditions apparaissent lorsque $m_S = m'_S$ et $m_I = m'_I$: aucun changement de polarisation de spins n'est observé. Ainsi, les règles de sélections sont indiquées à l'équation 1.8. Cependant, pour un champ parallèle, une transition électronique et nucléaire simultanée est permise à une intensité réduite : $|\frac{1}{2}, \frac{1}{2}\rangle \rightarrow |\frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\rangle$. De plus, à très haute puissance d'excitation, des procédés à deux

photons où $\Delta m_{S,I} = \pm 2$ sont observables.

$$\begin{aligned} \mathbf{B}_1 \perp \mathbf{B} : & \begin{cases} \Delta m_S = \pm 1 \\ \Delta m_I = 0 \end{cases} \\ \mathbf{B}_1 \parallel \mathbf{B} : & \begin{cases} \Delta m_S = 0 \\ \Delta m_I = 0 \end{cases} \end{aligned} \tag{1.8}$$

Ainsi, il est nécessaire lors de la conception d'une sonde de résonance magnétique de considérer un champ magnétique d'excitation \mathbf{B}_1 perpendiculaire au champ magnétique statique \mathbf{B} : la polarisation de ce rayonnement (où les photons doivent porter un moment angulaire) $\pm \hbar$ est polarisée circulairement vers la droite ou la gauche.

Notons que les nombres quantiques m_s et à faible champ m_I , ne soient pas représentatifs des moments angulaires puisqu'ils ne représentent pas les vecteurs propres de l'atome. Par contre, une dérivation similaire indique que certaines règles de sélection équivalentes sont imposées.

1.2 Spectroscopie par résonance paramagnétique électronique

Dans le cadre du projet présenté, un intérêt particulier est porté à la résonance paramagnétique électronique (RPE) ainsi que les réalisations existantes, leurs avantages ainsi que leurs limitations. Le type de spectromètre étudié s'apparente à un spectromètre à ondes continues (RPE-OC) contrairement aux spectromètres pulsés.

Un spectromètre de résonance paramagnétique standard contient trois parties importantes : une source de champ magnétique pour distinguer les niveaux d'énergies électroniques par l'effet Zeeman, une source d'excitation pour induire ces transitions et un transducteur pour les détecter. Cette prochaine section offre une description de ces parties inspirée de celles de Weil [2], Assenheim [1], Poole [28] et Roberts [29].

Champ Magnétique

Le champ magnétique statique responsable de l'effet Zeeman est usuellement créé par une bobine de Hemholtz supraconductrice afin d'atteindre des champs magnétiques de l'ordre de quelques Telsa. Cette source requiert donc elle-même un système de refroidissement cryogénique. De plus, puisque la source n'est qu'une bobine, l'amplitude du champ crée est modifiée en choisissant le courant correspondant.

Une considération importante est l'uniformité du champ sur le volume du spécimen étudié afin d'augmenter la résolution du signal détecté (voir section 1.3.3) . Similairement, afin d'assurer la fidélité des mesures ainsi que d'assurer leur reproductibilité, la bobine doit être alimentée par une source de courant extrêmement stable ou encore mieux, être opérée en mode persistant.

Afin de s'assurer une grande précision d'une mesure de résonance magnétique, il est important de considérer les fluctuations dans le champ magnétique de la bobine tel qu'attribué à la présence de vortex dans le fil supraconducteur. Ainsi, les spectromètres modernes sont équipés d'un système de rétroaction en temps réels ou encore des systèmes de stabilisation par induction de bobine passive.

Du point de vue de la détection, il est possible de mitiger ces fluctuations et augmenter le rapport signal sur bruit en opérant une bobine secondaire, dont le champ de faible intensité est modulé. Ce champ, parallèle à la bobine principale, a pour objectif d'encoder le signal de résonance magnétique dans l'amplitude de la modulation. Le signal correspondant est donc moyenné sur plusieurs cycles de cette modulation et représente la dérivé du signal de résonance magnétique.

Source d'excitation

Une première méthode d'excitation consiste en l'application d'un champ magnétique Zeeman constant et en balayant la fréquence d'une source de rayonnement électromagnétique. La détection est possible lorsque cette source entre en résonance avec la transition souhaitée. Ce type d'excitation requiert une source de rayonnement électromagnétique à fréquence variable ainsi qu'un transducteur, un système de détection ainsi qu'une ligne à transmission accommodant la gamme de fréquences requises.

Une deuxième méthode consiste en la simplification de l'électronique de détection, de la ligne à transmission et de la chaîne de détection par l'utilisation d'une fréquence d'excitation unique, où la condition de stabilité est essentiel à au bon fonctionnement de cette chaîne de détection. De plus, des transducteurs spécialisés peuvent être utilisés pour accentuer

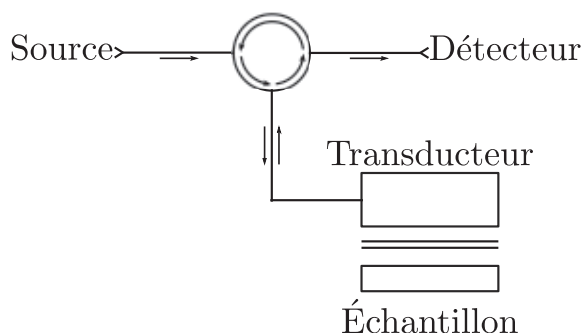


Figure 1.2 Montage de détection en réflexion d'un résonateur. Usuellement, le transducteur prend la forme d'une cavité de haut facteur de qualité. Le couplage entre le transducteur et l'échantillon étudié est visuellement représenté par deux lignes parallèles.

l'effet de la détection. Cette source entre en résonance avec la transition électronique lorsque l'énergie de celle-ci est modifiée par le balayage du champ magnétique Zeeman.

Transducteur et détection

Le transducteur standard d'une détection à fréquence unique est un résonateur de haut facteur de qualité, lequel concentre le champ d'excitation et ainsi augmente l'interaction avec les ensembles de spins. La conception de ce résonateur prend aussi en compte l'uniformité du champ d'excitation sur le volume de l'échantillon, le positionnement de celui-ci au maximum du mode magnétique ainsi que la polarisation de ce mode par rapport au champ Zeeman tel que décrit à la section 1.1.2. Ce résonateur est usuellement conçu pour une détection en réflexion où le signal spectroscopique provient d'une variation de la puissance absorbée par la cavité lorsqu'une transition électronique entre en résonance. Contrairement à un résonateur conçu pour une détection en transmission, ce dernier permet une augmentation du facteur de qualité puisqu'il possède une seule voie de couplage vers l'environnement soit le port d'entrée, soit un facteur de couplage réduit. Pour distinguer le signal incident du signal sortant, en plus de limiter la saturation du détecteur subséquent par le signal incident, un circulateur est placé à l'entrée du résonateur. Cet isolateur est un élément non réciproque permettant la propagation du signal dans une direction précise comme démontré à la figure 1.2. Le signal est ensuite détecté via un détecteur homodyne ou un convertisseur analogue à digitale haute vitesse.

Autrement, lorsque la fréquence d'excitation est variée, le signal est grandement atténué lorsqu'il est hors de la bande du résonateur. Ainsi, ces types de détecteurs sont réservés pour les spécimens de haute densité où le grand nombre de spins ainsi que la forte puissance d'excitation permettent de mesurer l'absorption directement. L'amplitude du signal transmis

est ensuite détectée de façon hétérodyne ou via un convertisseur analogue à digitale haute vitesse.

Également, la magnétisation de l'ensemble de spins peut être mesurée directement par une induction dans une bobine de détection (section 1.3). Cette bobine est orientée perpendiculaire au champ statique \mathbf{B}_0 ainsi qu'au champ oscillant \mathbf{B}_1 d'excitation.

De plus, d'autres méthodes ont été démontrées, telles que des expériences d'interférométrie où le délai de propagation d'une branche de l'interféromètre est modulé par la magnétisation des spins [30].

1.3 Caractéristiques du signal de résonance paramagnétique électronique continue

Puisque la nature du travail présenté se limite à une description qualitative de signaux de résonance magnétique, une explication simplifiée saura satisfaire les besoins d'analyses subséquents. Considérons donc le modèle phénoménologique de Bloch où la complexité des signaux RPE et RMN se limitent à des paramètres de relaxations empiriques. La nature des procédés contenus dans ces taux de relaxations sera ensuite discutée. Finalement, quelques considérations additionnelles quant à la forme du signal RPE seront mentionnées.

1.3.1 Modèle de Bloch

Le modèle de Bloch décrit les caractéristiques importantes des systèmes de résonances magnétiques par le biais de description macroscopique [31]. Il en va de soi que les subtilités quantiques et les interactions d'ordre supérieurs ne sont pas prises en compte.

Considérons un champ magnétique statique $\mathbf{B}_0 = B_0 \hat{\mathbf{z}}$ ainsi qu'un champ perpendiculaire d'excitation radiofréquence $\mathbf{B}_1 = B_1 \cos(\omega t) \hat{\mathbf{x}} + B_1 \sin(\omega t) \hat{\mathbf{y}}$. Après une longue excitation, l'orientation des moments magnétiques de l'ensemble est décrite par un mouvement de précession $\hbar\omega_B = \gamma_e \mu_B B_0$ autour de l'axe du champ statique \mathbf{B}_0 et où ω_B est dénommée la fréquence de précession de Larmor. Par la suite, lorsque le champ d'excitation \mathbf{B}_1 est retiré, l'angle de précession de ces moments retournera vers leurs valeurs à l'équilibre selon un taux de relaxation T_1 , usuellement attribué aux interactions spin-structure cristalline (phonon).

Par contre, puisque les moments ressentent tous un champ magnétique local différent causé par les contributions de leurs environnements, tous auront une fréquence de précession

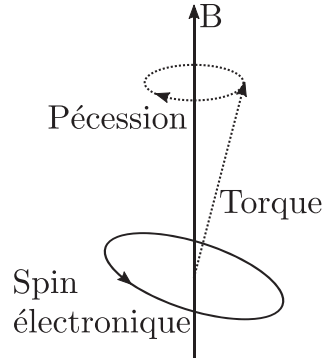


Figure 1.3 Précession d'un moment magnétique (spin électronique), lorsqu'exposé à un champ magnétique B. Figure tiré de Assenheim [1].

légèrement différente. Ainsi, la cohérence de cette précession sera perdue à un taux de relaxation T_2 , usuellement attribué aux interactions dipôles-dipôles.

Le vecteur de magnétisation macroscopique de l'ensemble est donc la somme des contributions de chacun des moments magnétiques : $\mathbf{M} = \sum_V \boldsymbol{\mu}_i$. Lorsque positionnée dans un champ magnétique, cette magnétisation ressent un couple qui définit les équations de Bloch :

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = \gamma(\mathbf{H} \times \mathbf{M}) - \left\langle \frac{M_x}{T_2}, \frac{M_x}{T_2}, -\frac{M_0 - M_z}{T_1} \right\rangle \cdot \hat{\mathbf{n}} \quad (1.9)$$

où M_0 est la magnétisation de l'ensemble à l'équilibre. Ainsi, considérant le référentiel tournant (indiqué par l'indice ϕ) synchronisé avec \mathbf{B}_1 (figure 1.4), la solution du régime permanent devient :

$$\begin{aligned} \mathbf{M}_{x\phi} &= -M_Z^0 \frac{\gamma_e B_1 (\omega_B - \omega) T_2^2}{1 + (\omega_B - \omega)^2 T_2^2 + \gamma_e^2 B_1^2 T_1 T_2} \\ \mathbf{M}_{y\phi} &= +M_Z^0 \frac{\gamma_e B_1 T_2}{1 + (\omega_B - \omega)^2 T_2^2 + \gamma_e^2 B_1^2 T_1 T_2} \\ \mathbf{M}_z &= +M_Z^0 \frac{1 + (\omega_B - \omega)^2 T_2^2}{1 + (\omega_B - \omega)^2 T_2^2 + \gamma_e^2 B_1^2 T_1 T_2} \end{aligned} \quad (1.10)$$

où $M_z^0 = \frac{\chi^0 B_0}{\kappa \mu_0}$, χ^0 et κ sont respectivement la susceptibilité magnétique statique dépendant de la densité de spin et la perméabilité relative de l'ensemble.

Une conséquence intéressante de ces équations est leur dépendance en puissance. Lorsque

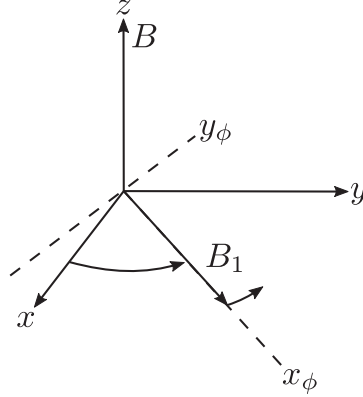


Figure 1.4 Systèmes d'axes utilisés pour définir les axes de magnétisation. Le système d'axe ϕ tourne à la fréquence ω du champ d'excitation B_1 . Figure tirée de Weil [2].

le champ d'excitation B_1 augmente, l'amplitude de magnétisation augmente de façon à saturer. Cependant, lorsque ce champ dépasse la valeur de saturation, la magnétisation diminue jusqu'à disparaître à très haute puissance. Il est donc nécessaire lors de l'expérience de choisir une puissance de spectroscopie de façon à maximiser le signal. De plus, étant donné que seulement l'excitation tournant avec la précession de Larmor contribue à la magnétisation, il est courant lors d'expériences de générer un champ d'excitation deux fois plus grand que le champ recherché : $\mathbf{B}_1 = 2B_1 \cos(\omega t)\hat{\mathbf{x}}$, lequel peut être considéré comme une combinaison linéaire $\mathbf{B}_1 = B_1(\cos(\omega t)\hat{\mathbf{x}} + \sin(\omega t)\hat{\mathbf{y}}) + B_1(\cos(\omega t)\hat{\mathbf{x}} - \sin(\omega t)\hat{\mathbf{y}})$.

À partir des équations de Bloch, la relation entre la magnétisation et le champ produit par les spins est déterminée par une susceptibilité magnétique complexe $\chi = \chi' - i\chi''$:

$$\begin{aligned}\chi' &= +\kappa\mu_o \frac{M_{x\phi}^0}{B_1} \\ \chi'' &= -\kappa\mu_o \frac{M_{y\phi}^0}{B_1}\end{aligned}\tag{1.11}$$

La partie imaginaire de cette susceptibilité magnétique est détectable directement via une mesure d'absorption photonique, équivalente à une mesure d'absorption de chaleur pour rétablir l'équilibre entre les populations de spins $A = \omega\chi''H_1^2/2$. D'autre part, lors d'une mesure dispersive telle que par des bobines de détection, la susceptibilité magnétique de l'échantillon est mesurée par l'observation d'un changement d'inductance mutuelle des bobines de détection : $M_{21} = \mu_o(1 + \chi) \int \mathbf{H}_1 \cdot d\mathbf{A}_2 / \int \mathbf{J}_1 \cdot d\mathbf{A}_1$, où \mathbf{A}_n est l'aire de la coupe de la bobine n, \mathbf{H}_1 est le champ magnétique de produit par la bobine 1 et \mathbf{J}_2 est la densité

de courant circulant dans la bobine 2. De cette façon, la composante réelle est détectable par la composante en phase et la partie imaginaire de cette susceptibilité est détectable par la composante déphasée du signal.

Similairement, l'entièreté de la susceptibilité magnétique complexe peut être déterminée dans un système dispersif avec un résonateur : la partie réelle se retrouve dans un changement de fréquence via un changement de l'inductance effective, tandis que la partie imaginaire apparaît dans le changement du facteur de qualité du résonateur où le spécimen entraîne des pertes (ou une résistance) additionnelles au résonateur [28].

1.3.2 Temps de relaxation

Considérons d'abord un scénario où un champ magnétique Zeeman \mathbf{B} et un champ d'excitation \mathbf{B}_1 sont appliqués uniformément sur le volume d'un spécimen. De plus, négligeons les interactions dipolaires de façon à ce que l'ensemble de spins partage les mêmes niveaux énergétiques $\Delta U = g \frac{\mu_B}{\hbar} B$.

Lorsque l'ensemble de spins ressent un pulse de champ magnétique (\mathbf{B} , $\hbar\omega = \Delta U$), l'ensemble de spins absorbe l'énergie et le ratio de spins au niveau supérieur et inférieur $\frac{N_s}{N_i}$ augmente. Cet arrangement correspond à une température électronique T_s décrite par la loi de Boltzman :

$$\frac{N_s}{N_i} = \exp\left(-\frac{\Delta U}{k_B T_s}\right) \quad (1.12)$$

L'ensemble de spins augmente donc en température et doit par la suite thermaliser avec son environnement, d'où la relaxation à un taux T_1 indicatif du niveau d'isolation de l'ensemble avec son environnement :

$$T_1 = (Z_s - Z_i)^{-1} \quad (1.13)$$

Ce taux de relaxation est déterminé par les probabilités de transition par unité de temps vers le niveau supérieur et inférieur $Z_s = B\rho_\omega + W_s$ et $Z_i = A + B\rho_\omega + W_i$, lesquels décrivent plusieurs mécanismes de transitions. Ici A représente le taux d'émission spontanée du niveau supérieur vers le niveau inférieur, B est le taux d'émission et d'absorption stimulé, ρ_ω est la densité de radiation et $W_{s,i}$ sont des termes additionnels correspondant aux interactions avec l'environnement (ex. structure cristalline du spécimen).

Usuellement, le taux d'émission spontané est relativement faible comparativement aux autres contributions et peut ainsi être ignoré. De plus, lors d'une excitation hors résonance, la densité de radiation ρ_ω est donnée par la distribution de Plank. Puisque ces expériences sont complétées à températures cryogéniques, ce terme est négligeable. De plus, lorsque le terme de radiation domine, le système est dit saturé en puissance puisque le taux de transition sont égaux et le signal RPE est nul.

Finalement, lorsque l'on ajoute les contributions d'autres moments dipolaires, ceux-ci dominant le taux de relaxation. Cette relaxation provient majoritairement d'interactions dynamiques avec des phonons dans le réseau cristallin environnant. Puisque la distribution énergétique de phonon est décrite par la distribution de Boltzman, il est de sorte de $W_s \ll W_i$. À très basse température, le mécanisme prépondérant est le processus direct où la transition est complètement mitigée par un phonon, expliquant l'appellation relaxation spin-réseau cristalline T_1 [2].

D'un autre côté, le temps de relaxation T_2 dénommé temps de relaxation transverse (équ. 1.3.1) ou temps de relaxation spins-spins est usuellement attribué à un échange d'énergie entre les spins. Ce mécanisme peut être imaginé comme un processus de bascule (flip-flop) où la transition d'un spin modifie le champ magnétique local des spins environnants, ce qui peut stimuler une transition chez ceux-ci. Ainsi, similairement à l'interaction spin-réseau cristallin, l'interaction spin-spin diminue le temps de vie des états excités. Cependant, ce premier est un procédé enthalpique tandis que ce dernier est entropique, où l'énergie totale du système est conservée [32].

Les descriptions détaillées de ces différents procédés de relaxations sont discutées dans la thèse de Roberts [29].

1.3.3 Largeur de raie

Considérons une expérience de spectroscopie en absorption de sorte que le signal de résonance paramagnétique électronique est directement proportionnel à χ'' (Éq. 1.11). Ainsi, le signal est proportionnel au changement moyen de magnétisation de l'échantillon ($H \frac{\bar{M}}{dt} = 2\omega\chi''B_1^2$) est de forme lorentzienne avec une largeur de raie :

$$\Gamma = T_2^{-1} \sqrt{1 + \gamma_e^2 B_1^2 T_1 T_2} \quad (1.14)$$

Cependant, des considérations additionnelles sont nécessaires lorsque l'on considère l'excitation d'un ensemble de spins. Une première considération est l'élargissement uniforme

causé par des fluctuations de champs magnétiques locaux à chacun des spins, mais dont la moyenne temporelle est uniforme. Dans ce cas, le temps de relaxation dipôle-dipôle (spin-spin) peut être approximé par :

$$T_2 = |\kappa\gamma_e\Gamma|^{-1} \quad (1.15)$$

Avec $\kappa = 1$ pour une forme lorentzienne et $\kappa = \sqrt{2\ln 2}$ pour une forme gaussienne. Cette seconde forme est causée par l'élargissement non uniforme : différents regroupements de spins ayant des conditions magnétiques semblables de façon à ce que le signal mesuré soit la superposition de plusieurs regroupements de spins, chacun résonant à une fréquence distincte selon une distribution normale. Le signal mesuré est donc gaussien.

D'ailleurs, l'élargissement non uniforme peut être complexifié par une asymétrie du spectre provenant d'une anisotropie du spécimen étudié (facteur de correction Zeeman g anisotrope) ou encore par des interactions hyperfines. Similairement, les interactions avec d'autres espèces de moments magnétiques tels que des spins nucléaires ou électroniques ajoutent un terme additionnel dans l'Hamiltonien du système pouvant affecter la largeur de raie et l'énergie de l'ensemble sondé.

Chapitre 2

Résonateur supraconducteur

Une réalisation possible d'un spectromètre RPE est un résonateur supraconducteur près d'un ensemble de spins électroniques. Comme discuté à la section 1.3.1, un tel résonateur permet d'obtenir l'information de la partie réelle et imaginaire de la susceptibilité magnétique de l'ensemble de spins. De plus, l'avantage d'un résonateur supraconducteur est un facteur de qualité interne très élevé puisque la résistivité du supraconducteur est très faible, ce qui entraîne une amplification du signal spectroscopique.

Les sections suivantes contiennent les définitions et une explication simplifiées des éléments de théories nécessaires pour décrire le comportement d'un résonateur supraconducteur, soit un survol de la supraconductivité au travers de quelques modèles intéressants à l'application en question, la description des avantages spectroscopiques et propriétés électromagnétiques d'un résonateur de type coplanaire ainsi que les spécificités requises afin de décrire son comportement, lorsqu'utilisé comme détecteur RPE.

2.1 Supraconductivité

Les matériaux supraconducteurs possèdent certaines qualités particulières telle la disparition abrupte de toute résistance sous une température critique T_c ainsi que l'effet Meissner où sous T_c , le matériel devient parfaitement diamagnétique et expulse soudainement tout champ magnétique de son volume jusqu'à un champ critique H_c où la supraconductivité est perdue.

Considérant l'application d'un circuit supraconducteur à la réalisation d'un outil de spectroscopie de résonance paramagnétique électronique, les éléments de théories nécessaires

sont survolés, telle une explication du phénomène supraconducteur, de la réponse en champ magnétique ce celui-ci ainsi que le comportement d'entités limitantes aux performances du détecteur, soit les vortex.

2.1.1 Modèles considérés

Plusieurs théories décrivant différents phénomènes attribuables à la supraconductivité ont été développées au fil du temps, chacune conçue pour des applications particulières, offrant certains avantages et inconvénients. La plus simple est le modèle bi-fluide considérant un fluide normal et un fluide supraconducteur est capable de décrire plusieurs quantités macroscopiques, mais se limite aux effets de premier ordre [33]. La théorie de London d'autre part est aussi très simple et de caractère phénoménologique est la base pour plusieurs autres théories [34]. La théorie BCS, étant la plus rigoureuse et représente le modèle complet de supraconductivité standard, permet de décrire macroscopiquement les caractères responsables de la supraconductivité classique [35]. Finalement, la théorie phénoménologique Ginzburg-Landau permet d'atteindre des résultats similaires à la théorie BCS avec une fraction de complexité mathématique. Au cours de la section suivante, ces théories seront discutées et les quantités d'intérêt pour la description du projet et ses avenues futures sont identifiées.

Théorie BCS

Une description des supraconducteurs dénommés classiques est donnée par la théorie microscopique de Bardeen, Cooper et Schrieffer (BCS) où la conduction électrique est décrite par le mouvement de paires d'électrons (paires de Cooper), avec une longueur de cohérence (taille de l'état de Cooper) ξ_0 [35]. L'idée principale provient d'une interaction entre le réseau cristallin (phonon) et une paire d'électrons près du niveau de Fermi. Un premier électron déforme légèrement le réseau cristallin lors de son passage, formant une charge positive temporaire permettant l'attraction d'un second électron. Ainsi, une faible attraction entre deux électrons par un phonon déstabilise la mer de Fermi et forme des paires de Cooper. Ces nouvelles quasi-particules agissent comme des bosons et se condensent en un état fondamental à une énergie (communément appelé gap supraconducteur) $2\Delta(T = 0) \approx 1.764k_B T_c$ sous le niveau d'énergie de Fermi. Ainsi, lorsque la température du matériel tombe sous la température critique, les paires de Cooper sont créées et un changement de phase vers l'état supraconducteur est observé. Ainsi, un électron seul additionnel sera promu au prochain niveau libre (le niveau de Fermi) et sera dans l'état normal du matériel [4].

Modèle London

D'autre part, une description phénoménologique proposée par les frères London est capable de décrire l'effet Meissner [34]. Les équations de London décrivent le mouvement d'électrons sans résistance ($m\dot{\mathbf{v}} = -e\mathbf{E}$ et $\partial_t J = -en_s\dot{\mathbf{v}}$) (2.1) ainsi qu'une restriction du courant supraconducteur Meissner (2.2), lequel est ensuite dérivé par BCS en considérant l'effet des paires de Cooper uniforme sur le volume de l'échantillon ainsi que la longueur de cohérence de ces paires de Cooper ξ_o . Les équations de London s'écrivent :

$$\frac{d\mathbf{J}_s}{dt} = \frac{e^{*2}n_s}{m^*}\mathbf{E} \quad (2.1)$$

$$\nabla \times \mathbf{J}_s = \frac{-e^{*2}n_s}{m^*c}\mathbf{B} \quad (2.2)$$

où \mathbf{v} est la vitesse mouvement des électrons, \mathbf{E} et \mathbf{J}_s sont respectivement le champ électrique et la densité de courant de surface. n_s est la concentration de charges supraconductrices avec propriétés de charge e^* et de masse m^* . La solution du champ magnétique est $\mathbf{B}_x = \mathbf{B}_x^0 \exp\left(\frac{-z}{\lambda_L}\right)$ où λ_L est la longueur de pénétration du champ magnétique dans le supraconducteur.

$$\lambda_L(B=0)^2 = \frac{m^*c^2}{\mu_o 4\pi n_s e^{*2}} \quad (2.3)$$

Aditionellement, cette expulsion de champ magnétique est détruite à un champ magnétique thermodynamique H_c relié à la différence d'énergie libre de Helmotz entre l'état supraconducteur et l'état normal à champ nul. Cette expulsion est causée par la circulation de courant de surface Meissner à une profondeur de l'ordre de la longueur de pénétration de London λ_L . À un champ magnétique supérieur à H_c , il est énergétiquement favorable pour matériel de retourner à l'état normal que de poursuivre le courant Meissner. Une densité de courant critique \mathbf{J}_c est aussi associée au courant Meissner maximal (courant critique) afin de respecter la condition de champ critique.

Modèle bi fluide

Une seconde théorie particulièrement utile pour quantifier la résistance résiduelle suivant la transition supraconductivité est le modèle à deux fluides, où la conduction est partagée entre des paires de Cooper et des électrons [33]. La contribution de ces derniers est fortement atténuée lorsque la température d'opération est beaucoup plus petite que la température critique. Le courant superfluide est décrit, selon les équations de London, par

$\frac{d\mathbf{J}_s}{dt} = (n_s e^2 / m) \mathbf{E} = (c^2 / 4\pi \lambda^2) \mathbf{E}$ et le courant normal est décrit par $\mathbf{J}_n = (n_n e^2 \tau_n / m) \mathbf{E}$. Ainsi, en considérant un champ électrique oscillant à haute fréquence $E \exp(i\omega t)$, la conductivité totale est approximée par :

$$\sigma = \sigma_1 - i\sigma_2 = \frac{n_n e^2 \tau_n}{m} - i \frac{n_s e^2}{m\omega} \quad (2.4)$$

où n_n est la concentration de charges non supraconductrices, τ_n est le taux moyen de collisions des électrons. Par conséquent, la puissance dissipée par unité de volume lorsqu'un courant oscillant est appliqué s'exprime $\rho_s J^2 = 1/\sigma J^2$. Ainsi, dans l'approximation où la conductivité du fluide normale est beaucoup plus petite que celle superfluide :

$$\rho_s = \frac{\sigma_1}{\sigma_2} = \frac{n_n}{n_s^2} \frac{m\tau_n}{e^2} \omega^2 \quad (2.5)$$

et où selon la théorie BCS, la densité d'électron normal diminue exponentiellement en température $n_n \propto \exp(-\delta/k_B T)$. De ce fait, à basse température $T \ll T_c$, cette résistivité peut être négligée.

Modèle Ginzburg-Landau

La théorie de Ginzburg-Landau, basée sur les équations de London et initialement phénoménologique, puis dérivée d'une théorie microscopique, décrit très bien les phénomènes de supraconductivité classique macroscopique [4, 36]. Cette théorie permet de considérer des inhomogénéités spatiales des phénomènes supraconducteurs. Sans aller dans les détails de la théorie, celle-ci se base sur une approche variationnelle de l'énergie libre de Helmholtz entre l'état supraconducteur et l'état normal, avec paramètre d'ordre dont l'amplitude de probabilité représente la concentration de porteur de charges. À partir de cette théorie, la majorité des résultats de London et de BCS sont retrouvés.

Un paramètre important de la théorie Ginzburg-Landau est la longueur caractéristique du paramètre d'ordre $\xi(T)$, sans aucune affinité particulière avec la longueur de cohérence du modèle BCS, ce paramètre permet de définir le champ magnétique critique :

$$H_c(T) = \frac{\Phi_0}{2\sqrt{(2)\lambda_{\text{eff}}(T)\xi(T)}} \quad (2.6)$$

où $\Phi = \frac{h}{2e}$ est le quantum de flux magnétique et λ_{eff} est la longueur de pénétration effective

considérant la longueur de cohérence ainsi que de la longueur du libre parcours moyen des électrons l_m tels que $\lambda_{\text{eff}} = \lambda_L \sqrt{1 + \frac{\xi_0}{l_m}}$ dans l'approximation locale.

À partir de cette longueur caractéristique et de la longueur de pénétration de London, un paramètre Ginzburg-Laudau sans unités $\kappa = \frac{\lambda_{\text{eff}}}{\xi(T)}$ est utilisé pour définir deux types de supraconducteurs : Type I si $\kappa < \frac{1}{2}$ et type II autrement.

2.1.2 Champs critiques

Par souci de simplicité mathématique, la suite de la description de supraconductivité est contenue dans la théorie de Ginzburg-Laudau. Lorsqu'un supraconducteur est sujet à un champ magnétique, les porteurs de charges dans celui-ci développent des niveaux d'énergies semblables aux niveaux de Landau proportionnel à la longueur caractéristique du paramètre d'ordre. Le niveau d'énergie maximal correspond à un champ magnétique critique au-delà duquel la supraconductivité n'est plus possible.

$$H_{c2} = \frac{4\pi^2 \lambda^2(0) H_c^2(0)}{\Phi} = \sqrt{2} \kappa H_c \quad (2.7)$$

Ainsi, dans un supraconducteur de type II $\kappa \gg 1/\sqrt{2}$, il est possible de conserver la supraconductivité au-delà du champ critique H_c . Cependant, cette augmentation du champ critique est accompagnée de la présence de vortex dans le supraconducteur (voir section 2.1.3). L'énergie du premier vortex est associée à un champ magnétique de transition H_{c1} entre la phase supraconductrice et la phase mixte contenant ces vortex :

$$H_{c1} \approx \frac{\Phi_0}{4\pi \lambda^2} \ln \kappa = \frac{H_c \ln \kappa}{\sqrt{\kappa}} \quad (2.8)$$

À champ près du champ critique H_{c2} , le vortex forme un réseau d'Abrikosov uniforme afin de minimiser leurs interactions [37]. Ainsi, lorsque le champ magnétique augmente entre H_{c1} et H_{c2} , le nombre de vortex et ainsi la densité du réseau de vortex augmente.

Couche mince

Un champ magnétique thermodynamique critique différent est attendu lorsqu'on considère un champ magnétique appliqué à une couche mince supraconductrice d'épaisseur $d \ll \lambda$. D'une part, une transition de phase de second ordre est suspectée puisque comparativement au volume supraconducteur, la couche mince est davantage pénétrée par un champ magnétique

perpendiculaire à la couche et a donc très peu d'énergie diamagnétique. Calculant l'énergie libre de Gibbs pour ce film à partir de la théorie de Ginzburg-Landau, la densité de charge supraconductrice est atténuée par le champ appliqué relatif à un champ critique effectif : $n_s(H) = n_s(0)(1 - \frac{H^2}{H_c^2})$. D'autre part, le champ critique de nucléation H_{c2} limite le champ magnétique perpendiculaire [4, 38] :

$$H_{c,\parallel} = 2\sqrt{6} \frac{\lambda(0)H_c(0)}{d} \quad (2.9)$$

$$H_{c,\perp} = H_{c2} \quad (2.10)$$

$$1 = |(H_T \frac{\sin \theta}{H_{c,\perp}})| + (H_T \frac{\cos \theta}{H_{c,\parallel}})^2 \quad (2.11)$$

où θ est l'angle du plan de la couche supraconductrice et sa normale et H_T est le champ critique effectif de la couche mince. Ainsi, la densité de courant supraconductrice et conséquemment la longueur de pénétration de London évoluent avec le champ appliqué :

$$\lambda_L = \frac{\lambda_L(B=0)}{\sqrt{(1 - \frac{H^2}{H_T(\theta)^2})}} \quad (2.12)$$

2.1.3 Considérations de vortex

Le paramètre Ginzburg-Landau $\kappa = \frac{1}{2}$ représente le point d'équilibre en l'énergie positive diamagnétique de la phase normale et l'énergie négative de condensation de la phase supraconductrice. Abrikosov décrit cette valeur comme étant le seuil au-delà duquel il est énergiquement favorable pour le champ magnétique de pénétrer au travers du supraconducteur de façon discrète via un vortex d'Abrikosov [37]. Ainsi, un supraconducteur de type II se distingue par une phase mixte supraconductrice avec présence de vortex en forme de tube de rayon $r \approx \xi$, définie par un courant supraconducteur à sa périphérie ainsi qu'une partie normale en son cœur.

Ces vortex sont particulièrement intéressants puisqu'ils peuvent drastiquement changer les propriétés du supraconducteur tels qu'ajouter une forte hystérèse magnétique et des dissipations associées à la phase normale au cœur du vortex. Considérons trois effets de ces vortex soit la circulation de flux (flux flow), l'épinglèrent de flux (flux pinning) et le glissement de flux (flux creep).

Notons que chacun de ces effets est décrit de façon moyennée sur l'ensemble de la surface supraconductrice. En réalité, le mouvement de ces vortex crée des fluctuations de la

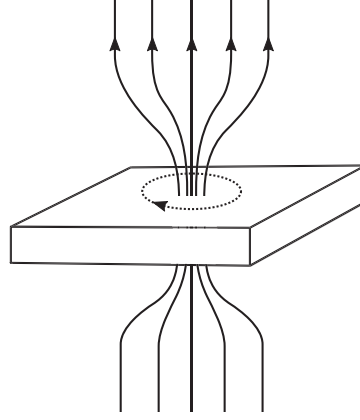


Figure 2.1 Représentation visuelle d'un vortex permettant au champ perpendiculaire de transpercer le film supraconducteur. Figure inspirée de Snarskii [3].

résistivité du supraconducteur, mais aussi des fluctuations du flux instantané au travers du supraconducteur.

Circulation de flux

Puisqu'un vortex est une entité électromagnétique constituée de charges en mouvement, il est possible d'attribuer une force similaire à la force de Lorentz . Un certain vortex ressentira donc l'effet des super courants de ses vortex voisins ainsi qu'un courant de transport, ce qui cause un mouvement du cœur non supraconducteur du vortex :

$$\mathbf{F} = \mathbf{J} \times \frac{\mathbf{B}}{c} \quad (2.13)$$

où $\mathbf{B} = \phi_o \hat{\mathbf{n}}_{\mathbf{J}_s}$ lorsque l'interaction entre vortex est considérée et $\hat{\mathbf{n}}_{\mathbf{J}_s}$ est la direction parallèle à la densité de courant. Ainsi, lorsqu'un courant de transport est appliqué, les vortex seront toujours en mouvement. De plus, lorsque ces vortex se déplacent à vitesse \mathbf{v}_v , ils induisent un champ électrique parallèle au courant :

$$\mathbf{E} = \mathbf{B} \times \frac{\mathbf{v}_v}{c} \quad (2.14)$$

Le déplacement de vortex peut être bien approximé par une description phénoménologique de mouvement visqueux dont la force d'amortissement s'écrit :

$$\mathbf{F}_v = -\eta \mathbf{v}_v \quad (2.15)$$

Le modèle de Bardeen-Stephen attribue ce mouvement visqueux à l'interaction dipolaire entre les vortex, entravant le mouvement de ceux-ci. En effet, considérant un vortex de rayon ξ , le champ électrique produit par le super courant à la frontière de vortex est similaire à un champ électrique dipolaire. De plus, la condition de continuité nécessite un champ identique à l'intérieur du vortex, lequel dissipe une énergie $W_{\text{cœur}} = \mathbf{v}_v^2 \Phi_0^2 / (4\pi a^2 c^2 \rho_n)$. En égalant cette dissipation avec l'énergie dissipée lors de l'application d'une force d'amortissement $W_v = -\eta \mathbf{v}_v^2$, le coefficient de traînée est ressenti par les vortex est identifié [4, 39] :

$$\eta \approx \frac{\Phi_0 H_{c2}}{\rho_n c^2} \quad (2.16)$$

où ρ_n est la résistivité du fluide normal au cœur du vortex.

Épinglement de flux

Lorsque les matériaux supraconducteurs de type II contiennent des inhomogénéités spatiales, soit des variations locales des paramètres de longueurs de pénétration $\Delta\lambda$, de cohérence $\Delta\xi$ ou encore de champ critique ΔH_c , certains minimas seront créés dans le potentiel du matériel, lesquels formeront des sites d'épinglement de vortex [40]. Ces inhomogénéités sont principalement causées par des impuretés ou des frontières de grain.

Lorsque la séparation de ces inhomogénéités est de l'ordre de la longueur du libre parcours moyen l_m , de la longueur de pénétration λ ou de la longueur caractéristique ξ , l'épinglement permet de compenser l'effet de la circulation de flux en appliquant une force restrictive. En présence de circulation de flux, cette force est nommée force de restauration puisqu'elle empêche les vortex de circuler. Ainsi, si les vortex sont déplacés d'une distance u d'un site d'épinglement, la force de restauration s'écrit :

$$F_r = \frac{B}{\phi_0 \kappa_p} u \quad (2.17)$$

où $\kappa_p = \langle \frac{d^2 U_i}{dr^2} \rangle$ est le paramètre de Labush et U_i étant l'énergie d'interaction entre les vortex et le réseau cristallin. Dans la plus simple approximation, cette force est constante. Notons néanmoins que lors que le supraconducteur est exposé à un champ magnétique statique superposé à un champ magnétique alternatif, ce paramètre ressent une correction du premier ordre en fonction du courant y circulant et responsable d'un changement de la position des vortex relatifs sites d'épinglement : $\kappa_p(J) = \kappa_p^2 \sqrt{1 - J/J_c}$.

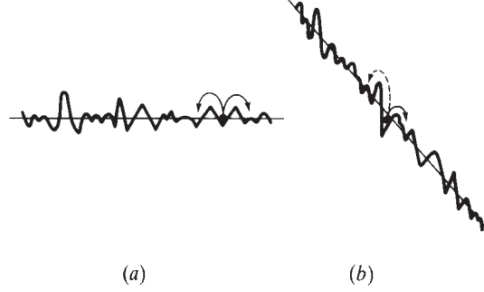


Figure 2.2 Représentation de flux sautant d'un site de site en site. Énergie thermique de vortex (a) et ajout des forces associées à la distribution de courant ou un gradient de champ magnétique, favorisant le glissement de flux (b). Figure tirée de Tinkham [4].

Glissement de flux

Malgré les effets bénéfiques que l'épinglage pour limiter la circulation de flux, un second phénomène toujours présent est le glissement de flux activé thermiquement [41]. Lequel force le saut d'un vortex de site en site. Lorsque la densité de courant ou le gradient de vortex est élevé, le taux de glissement est accru. En effet, ces effets inclinent l'énergie spatiale des vortex, ce qui favorise les sauts de sites à sites vers la plus basse énergie, créant un mouvement net de vortex.

Les sauts activés thermiquement sont décrits, avec bonne correspondance entre expériences et théorie, par une énergie d'activation $U = U_0 J_c / J$, donnant une énergie de vortex $E_v = \exp(-U/k_B T) = E_c (J/J_c)^{U_0/K_B T}$, où U_0 et E_c sont des paramètres de régression. Ainsi, similairement à la discussion de la circulation de flux, une résistivité effective est associée à ce mouvement de flux :

$$\rho_v = \rho_v(0) \left(\frac{J}{J_c} \right)^\sigma \quad (2.18)$$

où $\sigma = n - 1$, $n = U_0 / K_B T$ et $\rho_v(0)$ est la résistivité d'autres contributions de vortex. Ainsi, en considérant uniquement les effets de la circulation et du glissement de flux, ainsi qu'en considérant l'approximation $\mathbf{B} \approx \mu \mathbf{H}$, la résistivité attribuée au mouvement de vortex dans le supraconducteur est [41] :

$$\rho_v(J, B) = \rho_n \frac{B}{B_{c2}} \frac{(J/J_c)^\sigma}{(1 + (J/J_c)^\sigma)} \quad (2.19)$$

2.2 Résonateur supraconducteur de type guide d'ondes coplanaire

Un micro résonateur planaire de type micro ruban ou coplanaire est une avenue intéressante pour l'application EPR puisque contrairement aux cavités tridimensionnelles, elles opèrent en mode transverse électromagnétique (TEM) plutôt que transverse électrique (TE) [42]. Ainsi, leur volume peut être diminué puisque leur fréquence de résonance est déterminée par la longueur du résonateur en plus de ses caractéristiques de vitesse de propagation spécifique aux matériaux et à la géométrie du résonateur. Aditionnellement, le premier mode d'un résonateur $\lambda/2$ permet de maximiser l'interaction avec l'échantillon en le positionnant au centre du résonateur où le mode magnétique est maximal. Similairement, à cette position le mode électrique est minimal, ce qui diminue les pertes supplémentaires associées à un échantillon conducteur. Finalement, le mode électrique est maximal aux bornes du résonateur permettant un fort couplage électrique aux autres parties du système soit une ligne à transmissions de type guide d'onde coplanaire cheminant le signal vers les instruments.

La distribution de champ magnétique émis par ces structures est à la fois le point fort et le point faible de cette implémentation RPE : le mode émis est hautement inhomogène et est concentré très près du conducteur central. Cette caractéristique est très intéressante pour la caractérisation de spins près de la surface, mais aussi très inquiétants lorsque la concentration de spins est très élevée puisque chacun des spins dans le volume de l'échantillon ressentira un champ magnétique différent en amplitude et en direction, élargissant le signal spectroscopique [43]. Une solution à ces effets potentiellement indésirables est la conception de géométries spécifiques tel un résonateur de type antenne boucle ou antenne planaire [44].

Une autre limitation de résonateur supraconducteur et le temps de réponse associé au grand facteur de qualité. Ainsi, afin de mesurer un événement tel que les caractéristiques transitoires de la réponse d'un pulse RPE il est nécessaire de concevoir le temps de réponse pour être plus petit que la résolution temporelle attendue.

Ainsi, les quantités de caractérisation du résonateur ainsi que les indicateurs de performances sont décrits, permettant de comprendre le comportement de ce dernier lors d'expériences, en plus de définir les pistes futures d'optimisation et de raffinement du détecteur lors de la conception.

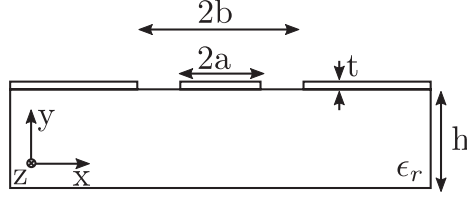


Figure 2.3 Section d'un guide d'ondes coplanaire

2.2.1 Description des propriétés d'un guide d'ondes coplanaire

Considérons un résonateur de type guide d'ondes coplanaire composé d'un substrat diélectrique ϵ_r et d'une mince couche conductrice d'épaisseur t , lequel forme un conducteur central de largeur $2a$ au centre de deux plans de masse de largeur c ($c \gg a$) séparés par une distance $2b$ tel qu'identifié à la figure 2.3. Le monde fondamental non nul ω_r du résonateur $\lambda/2$ correspond au double de la longueur l_r entre deux discontinuités du conducteur central ainsi qu'à la vitesse de propagation du guide d'onde coplanaire : $2\pi\omega_r = v_{ph}/2l_r$ où la vitesse de propagation s'écrit :

$$v_{ph} = \frac{c}{\sqrt{\epsilon_{eff}}} = \frac{1}{\sqrt{L'C'}\sqrt{\epsilon_{eff}}} \quad (2.20)$$

où ϵ_{eff} est la permittivité effective du guide d'onde coplanaire. Ainsi , le facteur de propagation $\beta = \omega/v_{ph}$ est une fonction de la géométrie du résonateur. Une capacité effective ainsi qu'une inductance effective entre le conducteur central et les plans de masse définissent la vitesse de la lumière $c = 1/\sqrt{L'C'}$, ainsi que de la permittivité effective du diélectrique ϵ_{eff} .

Caractéristique d'éléments distribués

Ces caractéristiques sont déterminées par une méthode de cartographie conforme où la géométrie étudiée est cartographiée dans le plan complexe telle la cartographie Schwarz-Christoffel qui transforme la surface conductrice en un condensateur à plaque parallèle 2.4. Ainsi, les quantités par unité de longueur C' , L' ainsi que ϵ_{eff} , dans l'espace initial sont décrits :

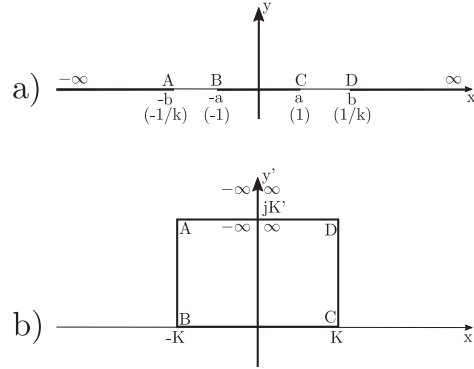


Figure 2.4 Cartographie conforme d'un guide d'ondes coplanaire d'épaisseur nulle (a) vers un condensateur à plaque parallèle (b). Figure tirée de Gao [5].

$$C' = \frac{Q}{V} = 4\epsilon_{\text{eff}}\epsilon_0 \frac{K(k)}{K(k')} \quad (2.21)$$

$$L' = I^{-2} \int_V \mathbf{B} \cdot \mathbf{H} dV = \mu_0 \frac{K(k')}{4K(k)} \quad (2.22)$$

où K est l'intégrale elliptique complète de première espèce, $k = a/b$, $k' = \sqrt{1 - k^2}$ et où, pour un substrat beaucoup plus épais que la largeur du conducteur central, la permittivité effective est $\epsilon_{\text{eff}} \approx (\epsilon_r - 1)/2$ où ϵ_r est la permittivité du substrat. Certaines corrections ont été proposées pour les considérations de conducteurs d'épaisseur finis, cependant les films supraconducteurs considérés sont de l'ordre de la dizaine de nanomètres et ainsi ces corrections peuvent être négligées [5].

Aditionnellement à l'énergie électromagnétique emmagasiné dans l'inductance $\frac{1}{2}LI^2 = W_m$, la résistivité idéalement nulle d'un supraconducteur cause une vitesse de dérive élevée. Ainsi, similairement à la rétroaction de la décharge d'énergie magnétique lorsqu'un courant alternatif est appliqué, la très grande vitesse des charges cause un retard de réponse lorsque le champ électrique est inversé. Une inductance cinétique peut donc être dérivée. En considérant l'énergie cinétique de toutes les charges dans le volume du conducteur $W_k = (n_s V) \frac{1}{2} m v^2$ ainsi que la définition de densité de courant $\mathbf{J} = n_s \mathbf{v}$, l'énergie cinétique et conséquemment l'inductance cinétique par unité de longueur s'écrivent [45] :

$$W'_k = \mu_0 \left(\frac{m}{2\mu_0 n_s e^2} \right) \frac{1}{A} I^2 = \frac{1}{2} L'_k I^2 \quad (2.23)$$

$$L'_k = \mu_o \lambda^2 g(x, y, z) \quad (2.24)$$

où A est l'aire de la section du conducteur et $g(x, y, z)$ est un paramètre responsable de la géométrie particulière du conducteur $g = \int (J/I_{\text{tot}})^2 dS$. Par exemple, pour un film contenant un courant uniforme, d'épaisseur d et de largeur $2a$, $g = 1/(wd)$. Similairement, le facteur géométrique pour un guide d'ondes coplanaire est [46] :

$$g = \frac{1}{2k^2 K(k)^2} \left[-\ln \frac{d}{4w} - \frac{w}{w+2s} \ln \frac{d}{4(w+2s)} + \frac{2(w+s)}{(w+2s)} \ln \frac{s}{w+s} \right] \quad (2.25)$$

où $s = b - a$ est la distance entre le conducteur central et le plan de masse, et $w = 2a$ est la largeur du conducteur central. Ainsi, l'inductance totale est la somme de l'inductance magnétique et cinétique (Éq. 2.22 et 2.24) :

$$L' = L'_m + L'_k \quad (2.26)$$

Pertes internes

D'autre part, deux sources d'atténuation sont considérées, la première étant les pertes associées à la fuite de champ électrique dans le diélectrique, déterminées par l'angle de perte du diélectrique δ_d et la constante de propagation du guide d'ondes β [47] :

$$\alpha_d = \frac{\beta}{2} \tan \delta_d \quad (2.27)$$

La seconde source de pertes considérées provient du conducteur central $\alpha_c = -\frac{dP}{dz}/2P$ où P est la puissance moyenne dissipée dans le guide d'ondes. Écrite de façon intuitive : $\alpha_c = R'/2Z_o$ où $Z_o = \sqrt{L'/C'}$ est l'impédance caractéristique du résonateur et $R' = R_s \oint (J/I_{\text{tot}})^2 dl$ est la résistance associée à un courant alternatif par unité de longueur du conducteur, considérant une épaisseur infiniment petite. Une approximation du guide d'ondes coplanaire est donnée par [48] :

$$\alpha_c = \frac{R_s \sqrt{\epsilon_{\text{eff}}^{\text{CPW}}}}{480\pi K(k)K(k')(1-k^2)} \left\{ \left(\frac{1}{a} \ln \left(\frac{8\pi a}{t} \frac{1-k}{1+k} \right) + \frac{1}{b} \left(\pi + \ln \left(\frac{8\pi b}{t} \frac{1-k}{1+k} \right) \right) \right) \right\} \quad (2.28)$$

où t est l'épaisseur du film supraconducteur, $\varepsilon_{\text{eps}}^{\text{CPW}} \approx 1 + \frac{\varepsilon_r - 1}{2} \frac{K(k')K(k_1)}{K(k)K(k_1)}$ est la permittivité du résonateur et R'_s est la résistance de surface du supraconducteur associé aux pertes causées par le mouvement de vortex $R_s = \rho/d$ ainsi qu'à la résistance de surface résiduelle du fluide normal.

Aditionnellement, les pertes radiatives et pertes dans les conducteurs de masses peuvent être considérées [49].

Couplage externe

Aditionnellement, les discontinuités de longueur w du conducteur central formant les frontières du résonateur sont décrites comme un très mince transformateur [50], lequel peut être modélisé comme une inductance en série et par le théorème de dualité de lignes de transmission homogènes ($L'C' = \epsilon\mu$) [51], est exprimé en tant de condensateurs de couplage C_c :

$$C_c = \epsilon_{\text{eff}}\epsilon_o \left[\frac{w}{2\pi} \left(p - \sqrt{1+p^2} + \ln\left(\frac{1+\sqrt{1+p^2}}{p}\right) \right) \right]^{-1} \quad (2.29)$$

où $p = a/2w$ et si les longueurs définissant la discontinuité sont beaucoup plus petite que la longueur d'onde du résonateur.

2.2.2 Figures de mérites

Trois figures de mérites importantes sont nécessaires pour identifier les performances d'un résonateur : la fréquence de résonance, le facteur de qualité ainsi que les pertes d'insertions. La fréquence de résonance permet d'identifier quels signaux seront transmis dans le résonateur. Le facteur de qualité détermine la largeur de bande du résonateur $Q = \omega_r / \Delta\omega_r$ à mi-hauteur, ce qui identifie le comportement en fréquence du résonateur, mais aussi son taux de perte avec l'environnement : un facteur de qualité élevé indique une isolation de l'environnement. Le temps de réponse du résonateur à un évènement est donné par $\tau = 2Q/\omega_r$. Finalement, les pertes d'insertions sont une indication de la quantité d'énergie réfléchie lorsqu'un signal pénètre le résonateur.

Afin de décrire adéquatement ces figures de mérites, il est possible de considéré un circuit RLC parallèle équivalent valide près de la résonance : $R = Z_o/\alpha l$, $C = C'l/2$ et $L_n = 2L'l/n^2\pi^2$, où le dernier sera responsable de l'identification du mode d'intérêt [6]. Z_o est l'impédance du résonateur, tel que discuté à l'annexe A.

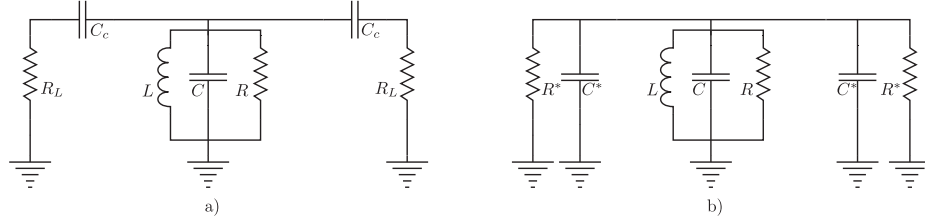


Figure 2.5 a) Représentation RLC du résonateur couplé aux lignes d'entrée et de sortie, b) Circuit équivalent composé de circuits Norton à l'entrée et à la sortie du résonateur. Figure tirée de Goppl [6].

Similairement, le circuit Thévenin de la charge à l'entrée et à la sortie du résonateur est transformé en circuit équivalent Norton 2.5 : $R^* = (1 + \omega_n^2 C_c^2 R_L^2) / \omega_n^2 C_c^2 R_L$ et $C^* = C_c / (1 + \omega_n^2 C_c^2 R_L^2)$ où $\omega_n = n\omega_0 = 1/\sqrt{L_n C}$ est la fréquence angulaire du $n^{\text{ième}}$ mode du résonateur en circuit ouvert. Ainsi, la fréquence effective du résonateur lorsque chargé devient :

$$\omega_n^* = \frac{1}{\sqrt{L_n(C + 2C^*)}} \quad (2.30)$$

Conséquemment, les différents facteurs de qualités, soit le ratio d'énergie emmagasinée et de l'énergie dissipée par cycle, peuvent être calculés :

$$Q_{\text{int}} = \omega_n R C \quad (2.31)$$

$$Q_{\text{ext}} = \frac{\omega_n R^* C}{2} \quad (2.32)$$

$$\frac{1}{Q_L} = \frac{1}{Q_{\text{int}}} + \frac{1}{Q_{\text{ext}}} \quad (2.33)$$

De plus, la perte d'insertion décrivant le ratio de puissance transmis et pénétrant le résonateur lors de la condition de résonance est donnée par le coefficient de couplage $g = Q_{\text{int}} / Q_{\text{ext}}$:

$$IL(dB) = 20 \log_{10} \left(\frac{g}{g + 1} \right) \quad (2.34)$$

Chapitre 3

Résonateur comme transducteur magnétique

L'application d'un résonateur de type guide d'ondes coplanaire à la résonance paramagnétique électronique est un défi technologique important. En effet, il peut être difficile de répondre aux restrictions associées au rayonnement appliqué et à la détection de la réponse d'un ensemble de spins. Dans l'optique d'utiliser le résonateur comme antenne RPE ainsi que détecteur de magnétisation de l'ensemble, il est nécessaire d'identifier deux caractéristiques primordiales, soit l'amplitude de la composante magnétique du signal acheminé ainsi que la réponse du détecteur à la magnétisation de l'ensemble de spins.

3.1 Description du mode magnétique

Comme décrit au chapitre précédent, le couplage du résonateur avec l'ensemble de spins est médié par le champ magnétique d'un rayonnement d'excitation. En effet, la magnétisation d'un spin est fortement influencée par l'amplitude du champ d'excitation appliqué : $M = M(B_1)$ (Éq. 1.10).

Un résultat analytique de la distribution de champ magnétique B_1 au travers d'un résonateur coplanaire, résultant de l'application d'un voltage à l'entrée V_o , est calculé par une méthode de cartographie conforme similaire à celle décrite à la figure 2.4. Des conditions de frontières périodiques sont considérées, ce qui restreint la validité des résultats à une région de proximité du conducteur central. La convention de paramètres géométrique et le système d'axes sont présentés à la figure 3.1 [52]. Le champ magnétique au-dessus du conducteur ($z < 0$) s'écrit :

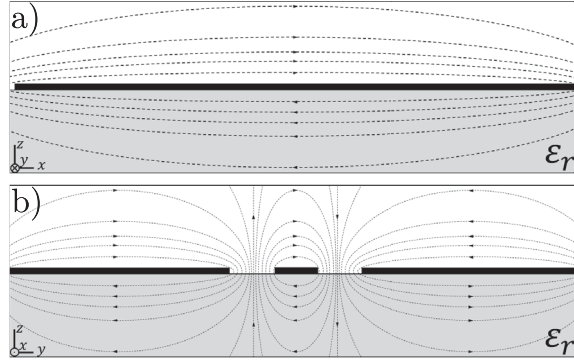


Figure 3.1 Champ magnétique généré par un résonateur de type guide d'ondes coplanaire. a) Coupe longitudinale illustrant le champ généré par le premier mode b) coupe transverse.

$$H_x = \frac{-j2V_o}{\eta b} \left(\frac{\lambda}{\lambda'}\right)^2 \frac{2b}{\lambda} \sum_{n>0} \frac{1 - (\lambda/\lambda')^2}{nF_n} \left[\frac{\sin(n\pi\delta/2)}{n\pi\delta/2} \sin(n\pi\bar{\delta}/2) \right] \sin\left(\frac{n\pi y}{b}\right) e^{-\gamma_n|z|} e^{j(\omega t - 2\pi x/\lambda')} \quad (3.1)$$

$$H_y = \frac{2V_o}{\eta b} \frac{\lambda}{\lambda'} \sum_{n>0} \frac{1}{F_n} \left[\frac{\sin(n\pi\delta/2)}{n\pi\delta/2} \sin(n\pi\bar{\delta}/2) \right] \cos\left(\frac{n\pi y}{b}\right) e^{-\gamma_n|z|} e^{j(\omega t - 2\pi x/\lambda')} \quad (3.2)$$

$$H_z = \frac{2V_o}{\eta b} \frac{\lambda}{\lambda'} \sum_{n>0} \left[\frac{\sin(n\pi\delta/2)}{n\pi\delta/2} \sin(n\pi\bar{\delta}/2) \right] \sin\left(\frac{n\pi y}{b}\right) e^{-\gamma_n|z|} e^{j(\omega t - 2\pi x/\lambda')} \quad (3.3)$$

où $F_n = b\gamma/n\pi$, $\delta = w/b$, $\bar{\delta} = (s+w)/b$ et où λ' et λ sont respectivement les longueurs d'onde du résonateur ainsi que celle du voltage appliqué. Ainsi, le champ magnétique tel qu'illustré à la figure 3.1 est hautement inhomogène sur un large volume. Aditionnellement, le champ décroît exponentiellement en $-\hat{z}$ avec un facteur d'atténuation γ_n , indiquant un couplage accentué en surface et par le fait même, une sensibilité accrue pour les spins près du conducteur central.

Une remarque intéressante de ces résultats est la décroissance de l'amplitude du champ magnétique lorsque le résonateur est excité hors résonance. En fait, la forme du mode magnétique n domine lorsque la fréquence d'excitation se rapproche du mode n ($\omega_n - \omega_{n-1})/2 < \omega < (\omega_{n+1} - \omega_n)/2$, dans l'approximation de localité fréquentielle $\omega \approx \omega_n$. Cette affirmation est confirmée par les travaux de David Tran lors d'un stage théorique au

sein du projet. Cette contribution fût de modéliser les modes magnétiques d'un résonateur unidimensionnel. Le résonateur est une ligne à transmission discrétisée par une série de circuits du télégraphe par unité de longueur sans aucune perte ainsi qu'un condensateur comme couplage à la source. Par la méthode Lagrangienne, David a calculé la réponse du résonateur pour un voltage d'entrée V_o à une fréquence relative à un certain mode du résonateur. Par la suite, une généralisation est réalisée par une série de Fourier où chaque élément représente un mode du résonateur et chaque coefficient représente la réponse à la fréquence relative du mode en question. Ces travaux indiquent donc que la position de couplage optimal de l'ensemble de spins est au centre du résonateur, indépendamment de la fréquence d'excitation près du mode fondamental [53].

Finalement, pour une meilleure fiabilité de résultat du champ magnétique loin du conducteur central, une analyse par méthodes d'élément finis est recommandée. Considérant les résultats ci-dessus ainsi qu'une restriction près du premier mode du résonateur, le temps de calcul peut être drastiquement réduit en ne considérant que la distribution de champ magnétique à la fréquence de résonance. Ainsi, ces résultats de distribution de champs magnétiques sont utilisés comme référence de la courbure des champs tandis que leurs amplitudes sont déterminés par les travaux de David Tran.

3.2 Réponse magnétométrique

Les effets d'un champ magnétique appliqué sur un matériau supraconducteur sont discutés aux sections 2.1.2 et 2.1.3, où les équations 2.1 et 2.2 sont particulièrement intéressantes puisqu'elles relatent l'inductance cinétique au champ magnétique par l'entremise de la densité de charges supraconductrice $n_s = n_s(H)$. En effet, considérant $H/H_T \propto B/B_T$ et en substituant la densité de superfluide dans l'équation de la longueur de London, de l'inductance cinétique et de la fréquence du résonateur, nous trouvons :

$$\omega_r(B) = \frac{1}{\sqrt{C_{\text{eff}}(L_1 + \frac{L_k(0)}{1-x^2})}} = \omega_r(0)(1 - \frac{\alpha}{2}x^2) + \mathcal{O}(x^4) \quad (3.4)$$

où $x = B/B_T(\theta)$ et $H_T(\theta)$ est défini à l'équation 2.11 et $\alpha = L_k(0)/(L_k(0) + L_m)$ est un facteur de participation de l'inductance cinétique. La relation entre la longueur de London et le champ magnétique présenté à l'équation 2.12 est décrit par une série de Taylor similaire à l'équation 3.4 où les coefficients sont des polynômes du facteur de participation α . Expérimentalement, l'équation 3.4 est semi-empirique où plusieurs facteurs sont laissés

comme paramètres de régression, ces modèles sont usuellement en bon accord qualitatif avec les résultats expérimentaux [8], [54], [55].

3.2.1 Effet de vortex

Une seconde description de la dépendance en champ magnétique du supraconducteur prenant en compte l'effet de vortex est donnée par Coffey et Clem [56]. Cette théorie se limite au régime linéaire de la dynamique de vortex et s'inspire du modèle double fluide mentionné à la section 2.1.1. Elle permet de décrire l'effet des contributions mentionnées à la section 2.1.3 sur la longueur de pénétration en plus de l'orientation du champ magnétique ainsi que l'effet causé par la rupture des paires de Cooper dans une couche mince.

Ainsi, cette théorie prend en compte l'épinglage de vortex aux différentes irrégularités dans le matériel, la circulation de flux ainsi que le glissement de flux où des forces agissant sur les vortex représentent la force d'amortissement de mouvement visqueux ainsi que les forces thermiques aléatoires. Ces dernières seront négligées dans l'application de ce projet puisque les températures d'opérations sont de l'ordre du millikelvin. Par contre, une étude des dissipations du résonateur pourrait être intéressante pour un perfectionnement d'un système futur.

Le point de départ de cette théorie est une généralisation de l'équation de London (Éq. 2.1 - 2.2) où le champ magnétique des vortex est ajouté : $\nabla \times \mathbf{J}_s = \frac{1}{\mu_0 \lambda^2} \mathbf{B} - \phi_0 n \hat{\mathbf{B}}_o$ où $n(r, t)$ est la densité de vortex et $\hat{\mathbf{B}}_o$ est le vecteur unitaire correspondant à l'orientation des vortex. À cette équation, s'ajoute une équation de mouvement des vortex causés par la force de Lorentz provenant du courant circulant dans le supraconducteur :

$$\mathbf{J}_s \times \phi_0 \hat{\mathbf{B}}_o = \eta \dot{\boldsymbol{\mu}} + \kappa \boldsymbol{\mu} \quad (3.5)$$

Ainsi, résolvant les équations de London modifiée, en considérant une orientation arbitraire du champ magnétique appliqué tel qu'illustré à la figure 3.2, deux longueurs de pénétration sont identifiées selon un système d'axes relatif à l'orientation du champ magnétique [7]. Par conséquent, certaines longueurs de pénétration effectives sont déterminées :

$$\lambda_\gamma^2 = \frac{\lambda - i\delta_v^2/2}{1 + 2i(\lambda/\delta_{nf})^2} \quad (3.6)$$

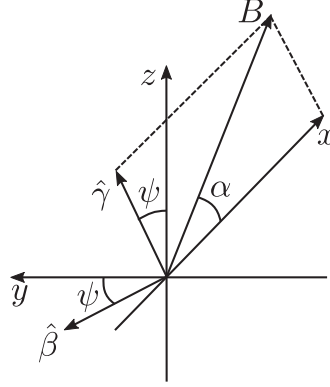


Figure 3.2 Changement d'axes relatif au champ magnétique appliqué afin de calculer λ_{eff} .
Figure tirée de Clem et Coffrey [7].

$$\lambda_{\beta}^2 = \frac{\lambda - i(\delta_v^2/2) \cos^2 \alpha}{1 + 2i(\lambda/\delta_{\text{nf}})^2} \quad (3.7)$$

$$\lambda_{\text{eff}} = \lambda_{\gamma} \cos^2 \phi + \lambda_{\beta} \sin^2 \phi \quad (3.8)$$

$$\delta_{\text{nf}} = \delta_n^2 / (B/B_m) \quad (3.9)$$

où λ est la longueur de pénétration appropriée pour un film mince dans un champ magnétique telle que décrit à l'équation 2.12, δ_v est la longueur de pénétration causée par les vortex, δ_{nf} est la longueur de pénétration causée par le fluide normal et δ_n est l'épaisseur de peau du fluide normal :

$$\frac{1}{\delta_v^2} = \frac{1}{\delta_f^2} + i \frac{1}{2\lambda_c^2} \quad (3.10)$$

$$\lambda_c^2 = B\phi_o / \mu_o \kappa_p \quad (3.11)$$

$$\delta_f^2 = 2B\phi_o / \mu_o \eta \omega \quad (3.12)$$

δ_f est le terme associé à la circulation de flux et λ_c est la longueur de pénétration de Campbell associé au potentiel d'épinglèrent de vortex [57]. De plus, κ est la force d'épinglement

causé par le potentiel d'épinglement et η est la viscosité du fluide de vortex [58]. Il est important de noter qu'une correction non linéaire de cette viscosité en fonction de la densité de courant a été précédemment observée.

Cette définition particulière de la longueur de pénétration est intéressante puisqu'elle contient une partie réelle et une partie imaginaire. Cette dualité permet de définir l'impédance de surface du résonateur et de même, l'impédance totale d'un film mince soit l'inductance cinétique et sa résistance :

$$Z_s = R_s + i\omega L_s = ig\omega\mu_o\lambda_{\text{eff}} \quad (3.13)$$

$$Z = R_v + i\omega L_k = ig\omega\mu_o\lambda_{\text{eff}}\mathbb{R}(\lambda_{\text{eff}}) \quad (3.14)$$

où g est un facteur géométrique.

Ainsi, il est possible de prédire le changement de fréquence d'un résonateur supraconducteur lorsqu'il est soumis à un champ magnétique externe par le changement de son inductance cinétique $\omega_r^2 = 1/C(L_m + (L_k + \Delta L_k(B)))$.

3.2.2 Signal de résonance paramagnétique électronique magnétométrique

L'aspect novateur du transducteur présenté est sa grande sensibilité en champ magnétique perpendiculaire. Celle-ci est exploitée afin de détecter directement la polarisation d'un ensemble de spins par une excitation semi-continue. En effet, pour un champ magnétique donné, un spin est orienté dans une orientation précise. Lorsqu'un champ d'excitation B_1 à une fréquence correspondant à une transition électronique permise est appliqué de façon continue, l'état du spin et donc sa polarisation est renversé à la fréquence d'excitation. Ce phénomène est expliqué par les équations de Bloch (Éq. 1.10) décrivant la magnétisation effective d'un ensemble de spins, lorsqu'excité.

Considérant une mesure magnétométrique de la magnétisation de l'ensemble de spins, le signal RPE est une modulation de la fréquence du résonateur supraconducteur causé par la composante perpendiculaire du champ magnétique créé par l'ensemble de spins sur la surface de détection du transducteur. Puisque ce champ est usuellement très faible, le signal est proportionnel à la tangente de la dépendance en champ magnétique du transducteur : $\text{Signal} \propto \partial_B \omega_r(B)$. De plus, afin d'augmenter la sensibilité du transducteur, un champ

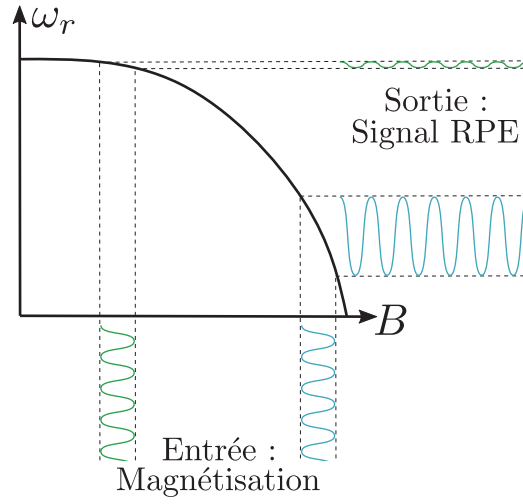


Figure 3.3 Amplification du signal de magnétisation par l'application d'un biais illustré par le déplacement du signal d'entrée (magnétisation) vers la droite (vert à bleu).

magnétique perpendiculaire est utilisé comme biais afin d'amplifier le signal RPE tel qu'illustré à la figure 3.3. Ainsi, l'approximation de la faible contribution du champ magnétique créé par l'ensemble de spins permet de simplifier l'expression du signal ainsi que la dépendance en champ magnétique transverse du détecteur pour une dépendance linéaire $\omega_r = \delta\omega_r B_\perp + \omega_0$:

$$\text{Signal} = \omega_r(B_\perp + M_\perp(0)) - \omega_r(B_\perp + M_\perp(B_1)) \propto \delta\omega_r(M_\perp(0) - M_\perp(B_1)) \quad (3.15)$$

3.3 Réponse dispersive transverse

Un second couplage, connu par la communauté d'électrodynamique quantique en circuit (cQED) est le couplage dipolaire magnétique entre un système à deux niveaux et un résonateur. Ce couplage permet l'hybridation d'états entre les photons piégés dans un résonateur et un système tel qu'un spin. En effet, pour puissance d'excitation faible, lorsqu'une certaine transition électronique est grandement isolée des autres transitions possibles, tel que par une importante séparation en énergie, celle-ci est approximée par un système à deux niveaux. De ce fait, en ne considérant que ces deux niveaux, l'interaction est décrite par l'Hamiltonien Jaynes-Cummings [59] :

$$\mathcal{H} = \frac{\hbar\omega_s}{2}\hat{\sigma}^z + \hbar\omega_r\hat{a}^\dagger\hat{a} + H_{\text{int}} \quad (3.16)$$

où le premier terme représente un spin, le deuxième terme représente le résonateur et le troisième leur interaction. $\hat{\sigma}^z$ est l'opérateur de Pauli z, \hat{a}^\dagger et \hat{a} sont les opérateurs de création et d'annihilation de photons \hat{a} . De plus, le terme d'interaction s'écrit :

$$\begin{aligned}\mathcal{H}_{\text{int}} &= -\hat{d} \cdot \hat{E} \\ &= -\sqrt{\frac{\hbar\omega}{2\epsilon_0 V}}(d_+\hat{\sigma}^+ + d_-\hat{\sigma}^-)(U(\mathbf{R})a + h.c.) \\ &= -\hbar g_x(\hat{\sigma}^+ + \hat{\sigma}^-)(\hat{a} + \hat{a}^\dagger)\end{aligned}\tag{3.17}$$

et où le terme $U(\mathbf{R})$ est la fonction spatiale du mode du résonateur, laquelle est considérée comme constante sur le long de la zone où les systèmes interagissent. En plus des termes $\hat{\sigma}^+$ et $\hat{\sigma}^-$ représentant les opérateurs de création et d'annihilation du spin. Finalement $g_x(B_1)$ est la force de couplage décrivant d'hybridation des états, contenant l'information du champ magnétique d'excitation.

3.3.1 Signal de résonance paramagnétique électronique dispersif

Poursuivant l'analyse du couplage dipôle-dipôle, considérons l'approximation où le résonateur est loin de la transition comparativement à la force de couplage $g_x \ll |\Delta\omega_{\text{sr}}|$, de façon à ce que le mode du résonateur soit modulé par l'état de l'ensemble de spins. Ce régime est nommé dispersif [60].

$$\begin{aligned}\mathcal{H} &\approx \frac{\hbar\omega_s}{2}\hat{\sigma}^z + \hbar\omega_r\hat{a}^\dagger\hat{a} + \hbar\frac{g^2}{\Delta\omega_{\text{sr}}}(\hat{a}^\dagger\hat{a} + \frac{1}{2})\hat{\sigma}^z \\ &= \hbar\frac{\omega_s + g^2/\Delta\omega_{\text{sr}}}{2}\hat{\sigma}^z + \hbar\omega_r(\hat{a}^\dagger\hat{a} + \frac{g^2}{\Delta\omega_{\text{sr}}}\hat{\sigma}^z)\end{aligned}$$

Cette équation est obtenue par une transformation unitaire permettant la diagonalisation de l'Hamiltonien Jaynes-Cummings suivi d'une perturbation où $\frac{g}{\Delta\omega_{\text{sr}}}$ est le petit paramètre et où $\Delta\omega_{\text{sr}} = \omega_s - \omega_r$. Cette description est intégrée à un modèle de transmission du résonateur [61] :

$$S_{21} = \frac{\sqrt{\kappa_1\kappa_2}}{i(\omega - \omega_r) - \kappa_{\text{eff}}/2}\tag{3.18}$$

$$\kappa_{\text{eff}} = \kappa_r + 2 \frac{|g_x|^2}{i(\omega - \omega_s) - \Gamma/2} \quad (3.19)$$

où κ_1 et κ_2 sont les couplages externes du résonateur κ_r est la largeur de bande du résonateur seul et Γ est la largeur de bande de l'ensemble de spins. Par conséquent, lors d'une interaction résonante, il est possible d'observer une modulation du facteur de qualité du résonateur. Similairement, lorsque cette interaction est hors résonance, le terme fréquentiel $(\omega - \omega_s)$ du facteur de qualité module la fréquence du résonateur.

Chapitre 4

Systèmes utilisés

4.1 Ensembles de spins étudiés

L'application particulière de la résonance paramagnétique électronique considérée lors du projet est celle de la mesure de deux ensembles de spins dans le diamant, soit les centres azote-lacunes (Nitrogen-Vacancy : NV) ainsi que les centres P1 d'azote. Les spécificités d'implantation et les structures cristallines de chacun de ces ensembles seront discutées, suivies d'une description de leur environnement afin de faciliter la compréhension des signaux spectroscopiques présentés dans les sections futures.

Le spécimen étudié est un diamant synthétique crût par dépôt chimique en phase vapeur (CVD) par la compagnie Element6. Le manufacturier assure une concentration de défauts d'azote $\leq 1\text{ppm}$. Ce spécimen était initialement destiné à une expérience de magnétométrie vectorielle par résonance magnétique de centres NV détectée optiquement (ODMR) par David Roy Guay et Louis Haberlé [44]. Étant donné que cette expérience repose sur une mesure du spectre d'émission de l'ensemble de spins lors d'une inversion de population, il est crucial d'avoir une quantité de spins appréciable.

Le diamant a donc été fortement implanté par un faisceau de particules à haute énergie, soit des protons de 10 MeV à une dose de 4×10^{16} ions/cm² à l'accélérateur Tandem de l'Université de Montréal. Lors d'une collision avec le réseau cristallin, le proton cause le délogement d'un atome de carbone créant des lacunes. Par la suite, les centres NV sont formés par un recuit de 800°C et 1000°C d'une durée de deux heures chacun, permettant aux lacunes de s'associer aux impuretés d'azote substitutionnel. Par mesure de photoluminescence, la densité de centres NV est estimée à $\rho \approx 10^{17}$ cm⁻³ [44]. Finalement, le diamant est coupé

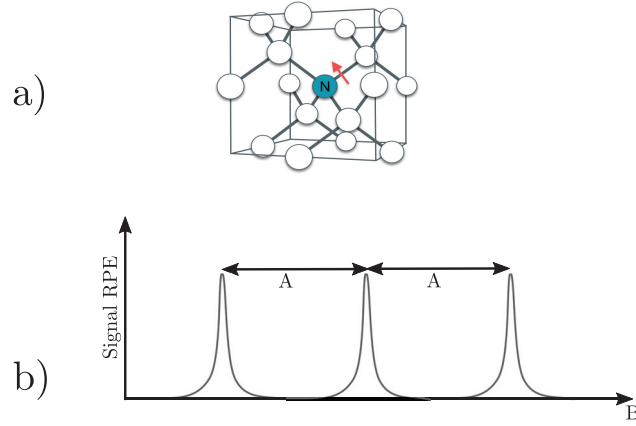


Figure 4.1 a) Représentation de la structure cristalline d'un centre P1 b) Diagramme d'un signal RPE typique, illustrant le couplage hyperfin A entre le centre P1 et le moment nucléaire de l'azote N^{14} substitutionnel.

et nettoyé pour limiter les défauts de surfaces. Les diamants finaux sont de dimension $1.5 \times 1.5 \times 0.3 \text{ mm}$.

4.1.1 Centres P1

Les centres P1 sont des défauts de types points constitués simplement par un atome d'azote substitutionnel dans le réseau cristallin de carbone du diamant (fig. 4.1a). Ces centres P1 représentent les défauts les plus répandus dans les diamants synthétiques où lors de la déposition, un atome d'azote provenant de l'atmosphère peut facilement remplacer un atome de carbone. Le spécimen étudié contient une grande quantité de ces défauts.

Puisque les centres P1 sont extrêmement communs, ils sont aussi utilisés comme marqueurs connus lors d'études EPR. Leur spectre est particulièrement intéressant par la présence de couplage hyperfin entre l'électron et le moment nucléaire de l'azote N^{14} substitutionnel. La forme distinctive du signal EPR de centre P1 (fig. 4.1b) est une conséquence de ce couplage. En effet, le pic central correspond à la résonance électronique permettant d'estimer le facteur de correction Zeeman $g = 2.0028$ ainsi que deux pics satellites également espacés de $A = 94.16 \text{ MHz}$ correspondants aux états triplets résultant du couplage hyperfin [62, 63].

Plusieurs termes participent à la description d'un système d'un spin dans une structure cristalline, cependant seulement certains d'entre eux ont une contribution appréciable à la détection RPE. Immédiatement, les termes associés à l'énergie de l'électron libre \mathcal{H}_1

et l'énergie potentielle causée par le champ électrostatique des atomes environnants sont négligés \mathcal{H}_2 , puisqu'ils ne contribuent pas au niveau d'énergie du spin. Négligeant d'autant plus le terme couplage spin-orbite \mathcal{H}_3 en considérant le moment angulaire $\mathbf{L} \approx 0$, ainsi qu'une simplification du terme Zeeman \mathcal{H}_4 comme étant uniquement dépendant du spin. Un terme d'interaction entre électrons \mathcal{H}_5 peut être négligé sous la supposition que les spins sont éloignés les uns des autres. Le terme de couplage hyperfin \mathcal{H}_6 entre électron et moment magnétique nucléaire est nécessaire pour expliquer les signatures satellites des centres P1. Finalement, deux contributions additionnelles sont usuellement négligées, soit un terme Zeeman nucléaire \mathcal{H}_7 ainsi qu'un terme responsable du diamagnétisme \mathcal{H}_8 [1].

$$\mathcal{H}_{P1} \approx \mathcal{H}_3 + \mathcal{H}_6 = g_e \beta_e \mu_o \mathbf{B} \cdot \hat{\mathbf{S}} + A \hat{\mathbf{I}} \cdot \hat{\mathbf{S}} \quad (4.1)$$

où $A = \frac{8\pi}{3} g_e g_n \beta_e \beta_n \delta(r)$ est la constante d'interaction hyperfine. $\hat{\mathbf{S}}$ et $\hat{\mathbf{I}}$ sont les termes de spin électronique et nucléaire. Ainsi, selon le spectre de résonance magnétique des centres P1, le facteur de correction Zeeman g est identifié par la position du pic principal tandis que la constante hyperfine A est identifié par la distance entre le pic central et les pic satellites correspondants à l'interaction avec le noyau atomique N^{14} .

4.1.2 Centres NV

Les centres NV proviennent également d'une impureté substitutionnelle azotée, auquel s'est associé un second défaut de type lacune. Le groupement azote-lacune peut être formé lors d'un recuit, où les lacunes se déplacent et s'associent avec l'atome d'azote. De plus, grâce à une symétrie trigonale (C_{3v}) de ce site cristallin [64], ce groupement se divise en quatre espèces, chacune identifiable par l'axe NV orienté dans les quatre directions du réseau cristallin [111] (fig. 4.2a).

Les centres NV^- contiennent six électrons, trois provenant des atomes de carbones adjacents à la lacune et trois autres provenant de l'atome d'azote chargé. Ces électrons partagent les liaisons pendantes σ_n de l'azote et $\sigma_{1,2,3}$ des atomes de carbones. Cependant, afin de respecter les conditions de symétries du potentiel nucléaire, les orbitales occupées sont une superposition ces liaisons pendantes [65] :

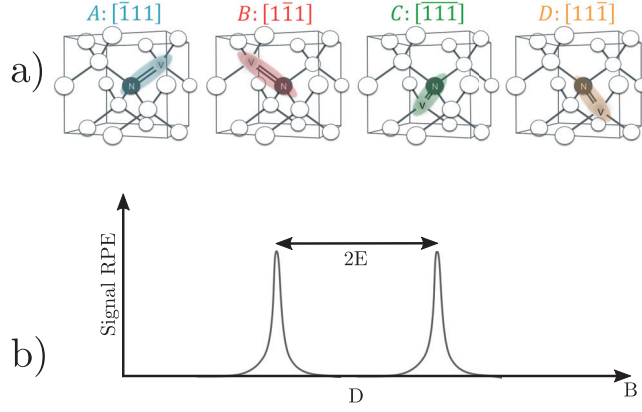


Figure 4.2 a) Représentation de la structure cristalline des quatre orientations possibles de centre NV b) Diagramme d'un signal RPE typique, illustrant la séparation à champ nul D entre l'état $m_s = 0$ et les états $m_s = \pm 1$ tandis que le paramètre $2E$ est la séparation à champ nul entre les deux niveaux $m_s = \pm 1$

$$\begin{aligned}
 a'_1 &= \alpha \frac{\sigma_1 + \sigma_2 + \sigma_3}{3} + \beta \sigma_n \\
 a_1 &= \beta \frac{\sigma_1 + \sigma_2 + \sigma_3}{3} + \alpha \sigma_n \\
 e_x &= \frac{2\sigma_1 - \sigma_2 - \sigma_3}{\sqrt{6}} \\
 e_y &= \frac{\sigma_1 - \sigma_3}{\sqrt{2}}
 \end{aligned} \tag{4.2}$$

L'état fondamental du centre NV^- est composé de quatre électrons dans les états a'_1 et a_1 ainsi que deux électrons dans les états $e_{x,y}$. Ainsi, ces derniers forment un état singulet-triplet $S=1$:

$$|^2A_3\rangle = |e_x e_y - e_y e_x\rangle \otimes \begin{cases} |1\rangle \\ |0\rangle \\ |-1\rangle \end{cases} \tag{4.3}$$

où $|0, \pm 1\rangle$ représente les états $m_s = 0, \pm 1$ et l'état $|e_x e_y - e_y e_x\rangle$ représente un moment angulaire sur la projection de l'axe NV nulle [65].

Similairement à la description des états des centres P1, une description adéquate du spectre des états $|^2A_3\rangle$ des centres NV requiert les termes Zeeman \mathcal{H}_3 et hyperfins \mathcal{H}_6 en plus d'un terme d'interaction dipolaire spin-spin entre électrons :

$$\mathcal{H}_3 = \frac{\mu_o g_1 g_2 \beta_e^2}{4\pi} \left[\frac{\hat{\mathbf{S}}_1 \cdot \hat{\mathbf{S}}_2}{r^3} - \frac{3(\hat{\mathbf{S}}_1 \cdot \mathbf{r})(\hat{\mathbf{S}}_2 \cdot \mathbf{r})}{r^5} \right] = \hat{\mathbf{S}} \cdot \mathbf{D} \cdot \hat{\mathbf{S}} \quad (4.4)$$

où les indices 1,2 réfèrent aux deux électrons de l'état triplet et $\hat{\mathbf{S}} = \hat{\mathbf{S}}_1 + \hat{\mathbf{S}}_2$ permettent de réécrire le terme dipolaire en un produit matriciel avec paramètre $\mathbf{D} = \mathbf{D}(\mathbf{r})$. Cette matrice est par la suite diagonalisée afin d'obtenir $\mathcal{H}_3 = D_x \hat{S}_x^2 + D_y \hat{S}_y^2 + D_z \hat{S}_z^2$, où l'axe $\hat{\mathbf{z}}$ est enligné avec l'axe NV. Additionnellement, puisque seulement la trace de \mathbf{D} est zéro, l'Hamiltonien est décrit selon les paramètres $D = \frac{3}{2}D_z$ et $E = \frac{1}{2}(D_x - D_y)$. Ainsi l'Hamiltonien total du'un type de centre NV est décrit :

$$\mathcal{H}_{NV_i} \approx g_e \beta_e \mu_o \mathbf{B} \cdot \hat{\mathbf{S}}_i + D(\hat{S}_{z,i}^2 - \frac{1}{3}S_i^2) + E(\hat{S}_{x,i}^2 - \hat{S}_{y,i}^2) + A\hat{\mathbf{I}} \cdot \hat{\mathbf{S}}_i \quad (4.5)$$

et où l'Hamiltonien complet du système de centres NV est la somme du précédent sur toutes les espèces : $\mathcal{H}_{NV} = \sum_i^4 \mathcal{H}_{NV_i}$. Les paramètres D et E sont identifiables expérimentalement : le paramètre D est la séparation à champ nul (ZFS) entre l'état $m_s = 0$ et les états $m_s = \pm 1$ tandis que le paramètre 2E est la séparation à champ nul entre les deux niveaux $m_s = \pm 1$ (fig. 4.2b). Bien que l'explication physique de ces paramètres ne soit pas triviale, $D \approx 2.87$ GHz est usuellement attribué à l'interaction entre deux spins libres du défaut, tandis que le paramètre $E \approx 100$ kHz est attribué aux contraintes locales du cristal [66, 67].

Bien qu'à haut champ magnétique, les fonctions propres de l'Hamiltonien du centre NV sont les fonctions $|m_s\rangle$, à faible champ où les termes D et E sont importants, les fonctions propres de l'Hamiltonien de spin est une combinaison linéaire des fonctions $|m_s\rangle$, et ainsi le nombre quantique m_s n'est plus un bon indicateur du moment angulaire. Ainsi, les règles de sélections $\Delta m_s = \pm 1$ ne sont plus triviales et une nouvelle transition $\Delta m_s = \pm 2$ devient possible. C'est pourquoi une classification indépendante de l'information du moment angulaire est adoptée : $|0\rangle, |1\rangle, |-1\rangle \rightarrow |g\rangle, |e\rangle, |f\rangle$. Cette notation définit l'état fondamental (ground state) $|g\rangle$, le premier état excité $|e\rangle$ et le second état excité $|f\rangle$.



Figure 4.3 Schéma du résonateur utilisé

4.2 Description du dispositif

Le dispositif utilisé comme transducteur magnétique est un résonateur supraconducteur fabriqué par Dany Lachance-Quirion [8]. Il est important de noter que le dispositif a été conçu pour répondre aux besoins spécifiques d'un tout autre projet. C'est pourquoi les propriétés du détecteur ainsi que les résultats présentés ne servent que de démonstration préliminaire du potentiel de cette technologie : les dimensions, matériaux et spécificités du détecteur présentées ne sont pas des guides pour la réalisation de ce type de détecteur.

4.2.1 Résonateur

Le résonateur en question est un résonateur de type guide d'ondes coplanaire tel qu'illustré à la figure 4.3. Le substrat utilisé est le GaAs non dopé pour des raisons spécifiques au projet antérieur. Notons que ce substrat entraîne des pertes diélectriques considérables, ce qui peut être grandement diminué en optant plutôt pour un substrat de silicium ou de saphir [68]. Afin de permettre l'application de champ magnétique perpendiculaire, le conducteur est une fine couche de niobium de 18 nm d'épaisseur, soit un matériau supraconducteur de type II. La température critique, le champ critique ainsi que la longueur de pénétration du niobium massif sont respectivement 9.25 K , 0.82 T et 39 nm [69].

Bien que la conception des propriétés électromagnétiques géométriques classiques (l'inductance et la capacité par unité de longueur) peut être relativement fiable, il n'en est pas usuellement le cas pour l'inductance cinétique puisqu'elle dépend de plusieurs paramètres intrinsèques au matériel choisi, ses propriétés de fabrications ainsi que son environnement électromagnétique.

Ainsi, le résonateur est conçu afin de présenter une fréquence de résonance contenue dans la bande radiofréquence C (4 - 8 GHz) définie par les standards IEEE, soit 6 GHz selon les propriétés géométriques classiques, ainsi qu'une impédance associée de 50Ω . Ainsi, la longueur du conducteur central, sa largeur et la séparation entre celui-ci et le plan de masse

sont respectivement $l_r = 6 \text{ mm}$, $g = 10 \text{ } \mu\text{m}$ et $s = 6.8 \text{ } \mu\text{m}$. Similairement, les discontinuités $3 \text{ } \mu\text{m}$ du conducteur central ($C_c \approx 1.9 \text{ fF}$) définissent les frontières du résonateur et sont conçues afin de permettre un haut facteur de qualité : $Q \approx 3500$.

Notons que la considération de l'inductance cinétique augmente significativement l'impédance du résonateur, diminuant ainsi sa fréquence de résonance. Dans le cadre du projet antérieur, le résonateur a été conçu ainsi afin d'accentuer l'effet des fluctuations du vide par le biais d'une impédance supérieure aux autres composantes, soit $93 \text{ } \Omega$ plutôt que $50 \text{ } \Omega$ [8]. De plus, la fréquence de résonance lorsque mesurée est de $f_r \approx 5.115 \text{ GHz}$ et une largeur à mi-hauteur de $\kappa_r/2\pi = 0.86 \text{ MHz}$.

Afin de maximiser le couplage entre l'ensemble de spins et le champ d'excitation B_1 (section 1.3), l'échantillon étudié est fixé au centre du résonateur par une gouttelette de graisse pour travaux sous vide. Ces changements d'environnement diélectrique entraînent une augmentation de la quantité de pertes de 25%, pour une largeur à mi-hauteur de $\kappa_r/2\pi = 0.97 \text{ MHz}$. Similairement, la fréquence de résonance diminue de 2.5%, soit à $f_r \approx 4.984 \text{ GHz}$.

4.2.2 Porte-échantillon

Le transducteur est connecté aux lignes de transmissions du réfrigérateur à dilution par l'entremise d'un porte-échantillon composé d'un circuit imprimé soutenu par un boîtier de cuivre tel qu'illustré à la figure 4.4.

Le circuit imprimé comporte six ports SMP radiofréquence (Rosenberger 19S102-40ML5, 0 à 40 GHz), lesquels acheminent le signal jusqu'au transducteur par des guides d'ondes coplanaires d'impédance $50 \text{ } \Omega$. Deux de ces traces sont conçues pour mesurer un dispositif en réflexion ou transmission tandis que les quatre autres (inutilisées ici), sont conçus pour appliquer des pulses radiofréquences lors du projet antérieur.

Additionnelement, deux ensembles de 19 traces (inutilisées ici) sont terminés par deux connecteurs (Sullins Connector Solutions SMH100-LPSE-S20-ST-BK) servent à acheminer des signaux basses fréquences.

Afin de conserver la qualité du résonateur, le diélectrique du circuit imprimé est une céramique spécialisée pour les applications radiofréquences (Rogers Corporation TMM10i, $\epsilon_r = 9.80 \pm 0.245$) de 0.38 mm d'épaisseur. Le conducteur est une couche de $17 \text{ } \mu\text{m}$ de cuivre plaqué de $4 - 5 \text{ } \mu\text{m}$ d'or non magnétique. Le circuit imprimé est visé sur une plaque de cuivre. Similairement, le résonateur est collé à la plaque de cuivre et est placé dans une récession

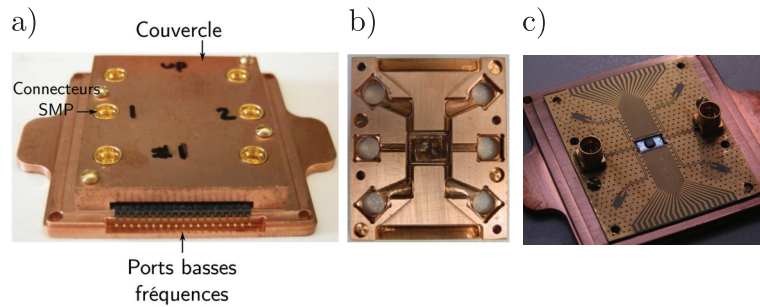


Figure 4.4 a) Image du résonateur sur le PCB et la plaque de cuivre, recouvert d'un boîtier. Note, seuls les ports RF du centre sont connectés, les autres sont recouverts d'une feuille d'aluminium. b) Intérieur du couvercle c) résonateur, diamant et PCB sur une plaque de cuivre [8].

au centre du circuit imprimé et sont connectés électriquement par des micro soudures aux différents ports utilisés. Pareillement, la mise à terre du dispositif est assurée par plusieurs micro soudures.

Un couvercle est utilisé afin de réduire les contraintes mécaniques sur les ports SMP et de s'assurer qu'aucun mode parasite ne puisse affecter le résonateur supraconducteur et l'échantillon étudié. Les détails de cette conception sont décrits par Dany Lachance-Quirion [8].

4.3 Montage expérimental

4.3.1 Système cryogénique et sources magnétiques

Par la nature supraconductrice du transducteur, il est nécessaire d'utiliser un système de réfrigération cryogénique. Par souci de disponibilité d'équipement, de simplicité d'implémentation avec le matériel disponible ainsi que de continuité avec les expériences antérieures, un réfrigérateur à dilution a été utilisé. Notons que les expériences antérieures nécessitaient une population de photon dans le résonateur de l'ordre de l'unité (et donc une très faible population thermique), tandis que cette limitation n'existe pas pour le système présenté. À préavis, l'implémentation du dispositif ne nécessite pas des températures de l'ordre du millikelvin. Cependant, aucune étude de variation en température ne fût complété.

À ce système, il est essentiel d'avoir une source de champ magnétique vectoriel afin de bien opérer le système selon le champ magnétique perpendiculaire à la surface supraconductrice ainsi que l'ensemble de spins selon le champ magnétique dans le plan du supraconducteur. Cependant, le réfrigérateur à dilution utilisé n'est pas équipé d'un système de champ magnétique vectoriel. Ainsi, il a été nécessaire d'en fabriquer un. Dans l'optique d'une preuve de concept du transducteur, il est nécessaire de contrôler seulement deux axes, soit perpendiculaire à la surface supraconductrice et un second axe arbitraire dans le plan du supraconducteur.

Ainsi, un premier champ magnétique (B_a) utilisé comme champ principal (Zeeman) de résonance paramagnétique électronique est créé par une bobine supraconductrice (7T100CF avec bobine de cancellation de Scientific Magnetics), contrôlée par un contrôleur d'aimant supraconducteur SMC120 de Scientific Magnetics et permettant l'application d'un champ atteignant jusqu'à 7 T.

Conception d'un électroaimant

Le champ magnétique perpendiculaire (B_b) permet de compenser un désalignement possible entre le champ Zeeman et le transducteur ($\ll 1^\circ$), en plus d'ajouter un biais supplémentaire afin d'ajuster la sensibilité du résonateur aux fluctuations de champ transverses B_b .

Cette bobine secondaire a été conçue avec un double objectif, soit une grande uniformité du champ appliqué à la surface du transducteur ainsi qu'un petit volume afin de permettre son installation au sein du système cryogénique existant. Cette bobine secondaire est un solénoïde de forme elliptique pour maximiser l'uniformité à la surface du transducteur. Elle repose sur un châssis de cuivre d'une longueur de 26 mm dont le demi-grand axe et le demi-petit axe sont respectivement $a = 37$ mm et $b = 25$ mm. Le courant circule dans un fil multi filament d'alliage cuivre-supraconducteur 54S43 de Supercon-wire dont le courant critique est largement supérieur aux besoins : 16 A à 2.4 K et 3 T. Il a été enroulé à l'aide d'un enrouleur et compteur électronique FZ-160 de Ningbo Feizhi et fixés par du vernis GE. Le diamètre du fil avec isolation est de 0.152 mm, ce qui permet de réaliser les 984 tours nécessaires pour une constante de champ calculé de 10.49 mT/A et par la suite mesurée à 12 mT/A.

Au centre du châssis se trouve une plateforme sur laquelle repose le porte-échantillon précédemment discuté, de façon à ce que sa surface supraconductrice soit perpendiculaire à l'axe central du solénoïde. Similairement, cette bobine secondaire est fixée sur une tige

de cuivre de façon à ce que le transducteur soit placé au centre de la bobine principale et parallèle à son champ magnétique (B_a).

Ainsi, ces caractéristiques permettent d'atteindre une uniformité calculée plus petite que 0.1% sur la taille du transducteur (2.25×4.4 mm) ainsi que la capacité de corriger, un désalignement de 0.6° du champ Zeeman ($B_a = 1$ T). De plus, cette base constante de champ permet de limiter les effets de fluctuations causées par la source de courant utilisé pour générer le champ magnétique perpendiculaire B_b . Par exemple, une fluctuation de $1 \mu\text{T}$ à la source résulte en une fluctuation de ≈ 10 nT au transducteur.

Plusieurs limitations additionnelles se rapportant à l'intégration du système cryogénique sont considérées. Par exemple, le couple ressenti pour une boucle de courant dans un champ magnétique peut être intense et même endommager les installations. Ainsi, les caractéristiques de la bobine choisie cause un couple ressenti à l'extrémité de la bobine secondaire de $T = 273$ $B_a B_b$, soit $T \approx 0.143$ Nm pour une opération normale de $B_a = 200$ mT et $B_b = 2.6$ mT.

Similairement, la thermalisation, dissipation et conduction thermique des fils d'alimentation peuvent limiter les performances de refroidissement du réfrigérateur en plus de perturber le signal spectroscopique. Par exemple, le fil de la bobine secondaire est acheminé jusqu'à l'étage de 4 K afin d'éviter la dissipation causée par des soudures entre supraconducteurs et conducteur normal. De plus, la dissipation thermiques de la gaine de cuivre de ces fils supraconducteurs ainsi que la conduction thermique totale de cette section sont négligeables par rapport à la puissance de refroidissement du réfrigérateur. Par la suite, des fils de cuivre de diamètre 30 selon l'unité de mesure Amerigan Wire Gauge (AWG) sont acheminés du stage 4 K vers l'extérieur du réfrigérateur. Puisque leur conductivité thermique et leur dissipation thermique peuvent s'avérer importantes, des enroulements de thermalisation ont été placés à chacun des étages du réfrigérateur (de même pour les fils supraconducteurs).

Finalement, la source de courant disponible était une Keithley 2400 SourceMeter, laquelle n'est pas conçue pour des charges inductives de l'envergure d'un électroaimant. Ainsi, une résistance de 10Ω , 10 W en céramique a été placée en série au port d'entrée de la bobine afin d'ajuster l'impédance perçue par la source. Une attention particulière lors de l'expérience a été requise puisque contrairement aux électroaimants commerciaux, le système utilisé ne comprenait pas de correction ou de protection particulières contre des surcharges causées par une rétroaction importante lors d'un changement rapide de champ magnétique.

4.3.2 Électronique

Une particularité du système présenté est sa simplicité de mesure où toute l'information d'intérêt est contenue dans le signal de transmission ou de réflexion au travers du transducteur. L'implémentation spécifique utilisée est une simple mesure de transmission du dispositif à deux ports. Malgré cela, trois lignes sont utilisées : une ligne de sortie où le signal spectroscopique est mesuré ainsi que deux lignes d'excitation (lesquels sont combinés avant d'entrer dans le dispositif) pour le détecteur et le spécimen étudié.

La ligne d'entrée de l'excitation du spécimen (fig. 4.5) est uniquement utilisée afin d'analyser, de caractériser, ou simplement de confirmer la présence de transition paramagnétique électronique au sein du spécimen. Cette étude nécessite une grande plage de fréquence dénommée fréquences d'excitation de résonance paramagnétique électronique f_e , générée par une source micro-onde MXG Analog Signal Generator N5183A (100 kHz-40 GHz) d'Agilent Technologies. Des atténuateurs (9 dB total) sont placés à tous les étages du réfrigérateur à dilution afin de thermaliser le signal et afin de limiter les réflexions.

La ligne d'entrée de l'excitation du résonateur (fig. 4.5) est uniquement utilisée afin de sonder le résonateur à une fréquence de spectroscopie du résonateur dénotée f_s . Ce signal est généré par le port 1 d'un analyseur réseau d'Agilent Technologies : PNA-L Network Analyzer N523C (10 MHz-40 GHz). Afin de ne pas affecter les expériences de spectroscopie par une interaction accidentelle avec un ensemble de spins ou une sursaturation du signal de résonance paramagnétique électronique (section 1.3), la puissance acheminée au transducteur est très petite. En effet, en plus des atténuations usuelles de thermalisation chacun des étages du réfrigérateur, cette ligne contient une atténuation additionnelle (50 dB total). De plus, l'implémentation actuelle du transducteur ne contient que deux ports : une d'entrée et un de sortie. Ainsi, lorsque le signal de spectroscopie du résonateur est combiné à celui de l'excitation RPE dans un coupleur directionnel, une atténuation additionnelle de 20 dB est présente.

Finalement, la ligne de sortie (fig. 4.5) achemine le signal résultant de l'expérience de spectroscopie aux instruments des mesures. D'abord, un filtre et deux circulateurs sont utilisés afin d'isoler le transducteur du bruit provenant de l'amplificateur cryogénique. Ce choix d'isolation est couramment utilisé lors d'expériences d'information quantiques nécessitant une population de photon s'approchant de l'unité dans le résonateur. Il a été utilisé ainsi lors des travaux précédents sur le projet en question, exécutés en collaboration avec Dany Lachance-Quirion et David Roy-Guay. Par la suite, deux amplificateurs radiofréquences sont utilisés pour un gain de 80 dB. Le signal résultant de cette chaîne d'amplification est acheminé au port 2 de l'analyseur réseau où une mesure de transmission est complétée.

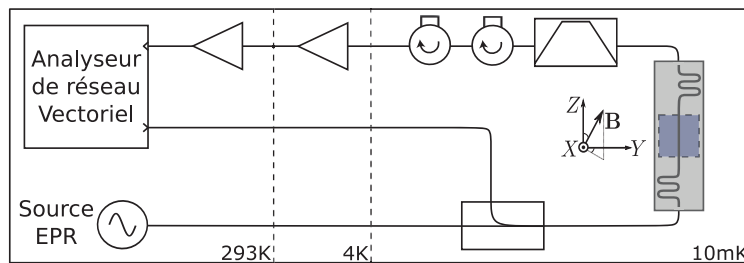


Figure 4.5 Montage expérimental où les atténuateurs et sources de champ magnétique ne sont pas représentés.

Dans l'optique d'un transducteur pour la résonance paramagnétique électronique, cette configuration d'isolation avant l'amplification est sous-optimale puisque par les pertes d'insertions de ces composantes, le ratio signal du bruit à l'instrument de mesure diminue. Par exemple, simplement remplacer les systèmes d'isolation par un isolateur unique diminuerait le fardeur de bruit F de 0.5, soit une augmentation du signal sur bruit à l'extrémité de la chaîne d'amplification de 30% [70]. Bref, bien qu'une amélioration de la chaîne de détection aurait été favorable, aucune optimisation n'a été entreprise par souci d'investissement de temps de diagnostic dans un réfrigérateur à dilution ainsi que pour la simple raison que la qualité du signal spectroscopique semble être limitée par la présence de vortex dans le transducteur.

Les spécificités du montage expérimental sont décrites au tableau 4.2

	Spectroscopie	EPR	Amplification
300K	PNA-L Port 1 <i>MiniCircuit</i> Coax	MXG ASG <i>MiniCircuit</i> Coax	PNA-L Port 2 <i>MiniCircuit</i> Coax
	—	—	<i>Low Noise Factory</i> 40dB Amplifier #LNR_15A 8468
	—	—	<i>Anritsu</i> $SMA_{F \rightarrow F}$ #K2208
	—	—	$90^\circ SMA_{F \rightarrow M}$
50K	2782-6426-01 CRYO	2782-6426-01 CRYO	2782-6426-01 CRYO
	2782-6426-20 CRYO	2782-6426-03 CRYO	2082-6418-03 CRYO
	—	—	$SMA_{F \rightarrow F}$ <i>An</i> K2208
	—	—	Amp <i>LNF</i> 40dB LNC03_14A 794B
Still	2782-6426-20 CRYO	2782-6426-03 CRYO	2782-6426-01 CRYO
Int.	2082-6418-10 CRYO 1703	2781-6426-01 CRYO	
Mix	2782-6426-01 CRYO	4862-6040-01 CRYO 1751	
	$90^\circ SMA_{F \rightarrow M}$		
	—	$90^\circ SMA_{F \rightarrow M}$	$90^\circ SMA_{F \rightarrow M}$
	<i>KRYTAR</i> D.C. @ -20dB 101040020K	<i>KRYTAR</i> D.C. @In 101040020K	
	—	—	<i>Quin</i> Circr #320 800 028
	—	—	<i>Quin</i> Circr #320 800 028
	—	—	<i>MC</i> Filter 15542 VBF-4440
	—	—	$90^\circ SMA_{F \rightarrow M}$
	<i>MC</i> SMA-SMP Coax		<i>MC</i> SMA-SMP Coax

Table 4.2 Liste de composantes utilisées lors des expériences, où chaque colonne représente une ligne dans le réfrigérateur. Le signal spectroscopique et EPR apportent les signaux au résonateur tandis que la ligne d'amplification retourne le signal aux instruments de détections.

Chapitre 5

Réalisation expérimentale

Ce chapitre présente des travaux d’exploration de la technologie de résonance magnétique RPE. Ces résultats poursuivent les travaux de thèse Dany Lachance-Quirion ainsi que des travaux effectués par l’équipe d’inventeur (Dany Lachance Quirion, David Roy Guay, Jérôme Bourasse, Gregory Brookes et Michel Pioro-Ladrière).

Un résonateur supraconducteur est utilisé comme transducteur magnétique permettant l’étude de la magnétisation de spins tels que ceux présents dans les centres NV et les centres P1 dans le diamant. Les propriétés du transducteur sont d’abord discutées suivi d’une caractérisation des ensembles de spins et finalement, une analyse des différentes contributions de signaux RPE.

Ainsi, ces travaux complètent la preuve de concept de la technologie.

5.1 Caractérisation

Tout d’abord, afin de bien comprendre les performances et limitations du transducteur ainsi que de permettre de définir certaines avenues d’optimisation pour une application technologique future, les caractéristiques d’intérêt du système de détection sont mesurées. Trois caractérisations principales ont été effectuées, soit une étude de la transmission du résonateur, de sa réponse en champ magnétique ainsi qu’une simple caractérisation de la bobine secondaire B_b développée pour cette application.

5.1.1 Environnement électromagnétique

Le résonateur et l'environnement électromagnétique du système sont sondés par une mesure de transmission S_{21} présentée à la figure 5.1a. Cette mesure permet d'identifier le premier mode du résonateur, son boîtier ainsi que la chaîne de filtrage et d'amplification. En effet, aucune calibration radiofréquence n'a été complétée afin d'isoler la réponse du détecteur du reste de l'environnement de test. Deux limitations importantes ont empêché cette calibration : la première étant le manque d'infrastructure pour compléter une calibration radiofréquence cryogénique et la seconde étant le fait que les propriétés de transmission et réflexion des différentes composantes changent avec la température, ce qui fausserait la calibration si celle-ci est complétée avant le refroidissement. Néanmoins, cette mesure sert de guide qualitatif du spectre de puissance dans le résonateur. Ainsi, la figure 5.1a indique une perte d'insertion de 42.4 dB, une forte atténuation hors de la résonance de 60 à 90 dB, ainsi qu'un plancher de bruit atténué entre 4 et 8 GHz, correspondant au filtre passe-bande placé après le résonateur.

Lorsque l'attention est portée près de la résonance, comme illustrée à la figure 5.1b, une régression est possible où la description complète du résonateur indiqué à l'équation A.7 est simplifiée par :

$$S_{21} = A \frac{\kappa_{\text{eff}}/2}{i(\omega - \omega_r) - \kappa_{\text{eff}}/2} + B e^{i\phi} \quad (5.1)$$

où κ_{eff} est la largeur à mi-hauteur de la résonance, indicatif de pertes internes et externes du résonateur. Contrairement l'équation cQED 3.18, cette description contient des termes additionnels tel que les effets d'amplification de la chaîne de détection ainsi que asymétries causé par les pertes internes et les jeux d'impédances. Ici, le premier terme comprend les informations de la résonance tandis que le deuxième contient les informations de pertes dissipatives. Ce dernier permet d'obtenir l'asymétrie du spectre présenté.

Les paramètres de régression de la figure 5.1b sont présentés à la table 5.1. Le facteur de qualité du résonateur est $Q_L = 3566$. Il est important de noter que ces valeurs ne sont valides que pour le moment exact de la prise de mesure : un changement de champ magnétique, le mouvement de vortex ou tout autre effet portant à la réorganisation de vortex pourraient légèrement altérer ces valeurs.

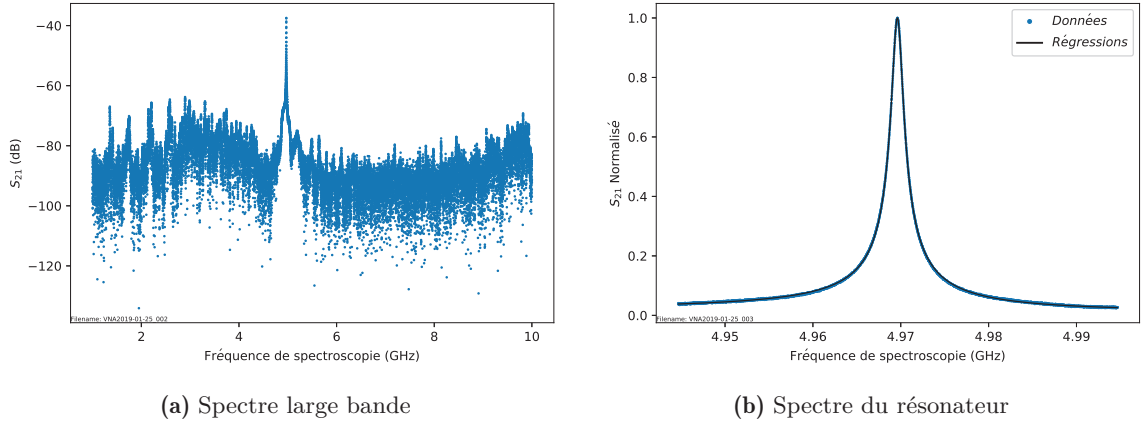


Figure 5.1 Résonance du résonateur et conséquences de l'environnement électromagnétique sur le signal transmission présenté sous forme de bruit et résonances parasites (a).
Note : les noms de fichiers de données bruts sont annoté au bas des figures.

Paramètre	Valeur extraite	unités
A	$7.578\text{E-}3 \pm 2\text{E-}6$	V/V
B	$1.317\text{E-}4 \pm 6\text{E-}7$	V/V
f_r	$4.9696217\text{E}9 \pm 3\text{E}2$	Hz
κ	$1.3934\text{E}6 \pm 5\text{E}2$	Hz
ϕ	$2.713 \pm 2\text{E-}3$	rad/s

Table 5.1 Spectre de transmission du résonateur : résultats de régression.

5.1.2 Réponse en champ magnétique

Par la suite, la réponse du résonateur en champ magnétique est mesurée. Cette mesure consiste à prendre un spectre du résonateur pour une série de champ magnétique. Afin d'observer les hystérèses, les mesures ont été complétées selon une rampe de type va-et-vient de zéro à un champ magnétique maximal, suivi du même champ à polarité inverse et finalement, un retour au champ maximal.

D'abord, la réponse en champ magnétique parallèle au plan supraconducteur B_a est étudiée. La séquence de rampe va comme suit : $0 \text{ mT} \rightarrow 200 \text{ mT} \rightarrow -200 \text{ mT} \rightarrow 200 \text{ mT}$ et la réponse correspondante à cette séquence est présentée à la figure 5.2. Une première régression moyenne des deux premiers termes de l'équation 3.4 est complétée sur l'ensemble de la séquence. Le ratio de participation est fixé à $\alpha = 0.70$ selon une étude antérieure complétée par Dany Lachance-Quirion [8]. De plus, le champ magnétique critique effectif est estimé à 1.428 T . Cette régression offre une faible concordance qualitative lors d'un déplacement vers un nouveau maximum (figure 5.2a). Similairement, une bonne concordance (pas présentée) est atteinte lors du retour d'un maximum, après avoir franchi une zone de changement brusque. Cette seconde concordance suppose un biais additionnel, lequel peut être expliqué par une nouvelle conformation de vortex.

D'autre part, il est possible de considérer les effets des vortex selon le modèle complet décrit à la section 3.2.1. Contrairement à la simplification précédente, cette régression concorde bien avec les données expérimentales illustrées à la figure 5.2b. Par contre, certaines sections n'ont pas pu être expliquées par le modèle, sont indiqués par une zone de bouleversement de vortex où ces derniers se réorganisent rapidement face à un nouveau champ magnétique. Ce phénomène a été observé lorsqu'en valeur absolue et d'une polarité donnée, le champ magnétique est diminué après avoir atteint un nouveau maximum.

Les résultats de la régression (éqs. 2.9 à 2.11 , 3.4 et 3.6 à 3.14) sont indiqués au tableau 5.2. Un élément intéressant ressortant de cette régression est une valeur d'épaisseur de peau différente selon la direction du changement de champ magnétique en valeur absolue. Une explication de ce phénomène s'explique par la reconfiguration soudaine des vortex au travers de la surface supraconductrice. En effet, le champ magnétique critique est altéré par la soudaine reconfiguration de champ perpendiculaire, lequel est extrait par le paramètre de régression d'épaisseur de peau (éq. 3.9). Ainsi, la résistivité effective du matériel est altérée par l'augmentation ou la diminution du nombre de cœur de vortex. Similairement, un fort changement de la viscosité des vortex est observé, mais peu de changement pour la force d'épinglement. Notons qu'un paramètre de régression additionnel est utilisé, soit B_{offset} ,

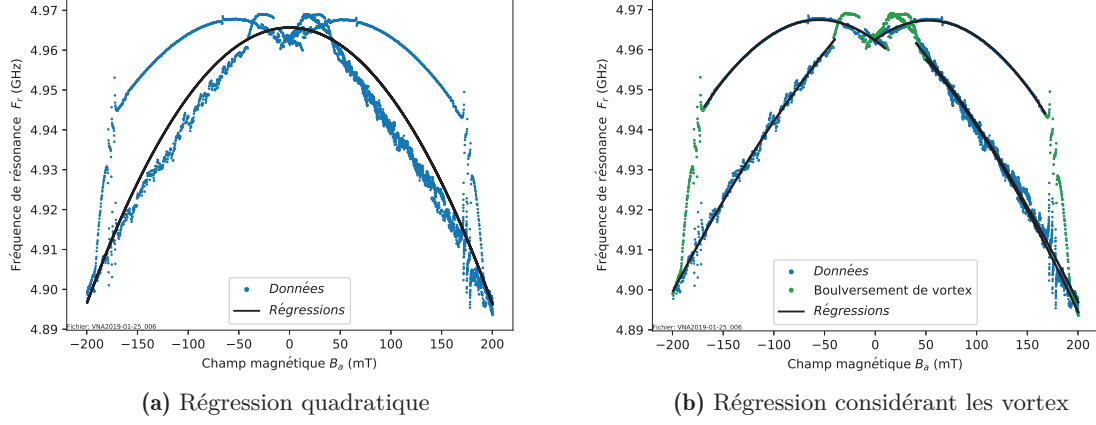


Figure 5.2 Description de la réponse du résonateur exposé au champ magnétique B_a créée par la bobine principale.

permettant de prendre en compte le champ magnétique traversant le film, permis par la présence de vortex.

Paramètre	Valeur $B_a = 170 \rightarrow 0\text{mT}$	Valeur $B_a = -40 \rightarrow -200\text{mT}$	unités
L_m	235	235	nH
C	1.29	1.29	fF
δ_n	349E-6	245E-6	m
κ	12.4E-12	11.8E-12	N
η	141E-12	5.88E-12	m^2/s
B_{offset}	132	74	mT

Table 5.2 Description de la réponse du résonateur exposé au champ magnétique B_a : résultats de régression.

Similairement aux analyses de la réponse en champ magnétique principal B_a , une analyse de la réponse du résonateur en champ magnétique transverse B_b dont la séquence de rampe va comme suit : $0\text{ mT} \rightarrow 1.3\text{ mT} \rightarrow -1.3\text{ mT} \rightarrow 1.3\text{ mT}$. La régression moyenne (figure 5.3a) estime un champ magnétique critique de 667 mT. Plus précisément, la régression prenant compte des vortex (figure 5.3b) montre des phénomènes semblables au cas précédent, mais à intensité réduite. Cependant, la zone de bouleversement de vortex près du champ nul est inexistante, permettant une régression presque continue : seul le bouleversement lors d'un rebroussement en champ magnétique est conservé. Les résultats de la régression sont

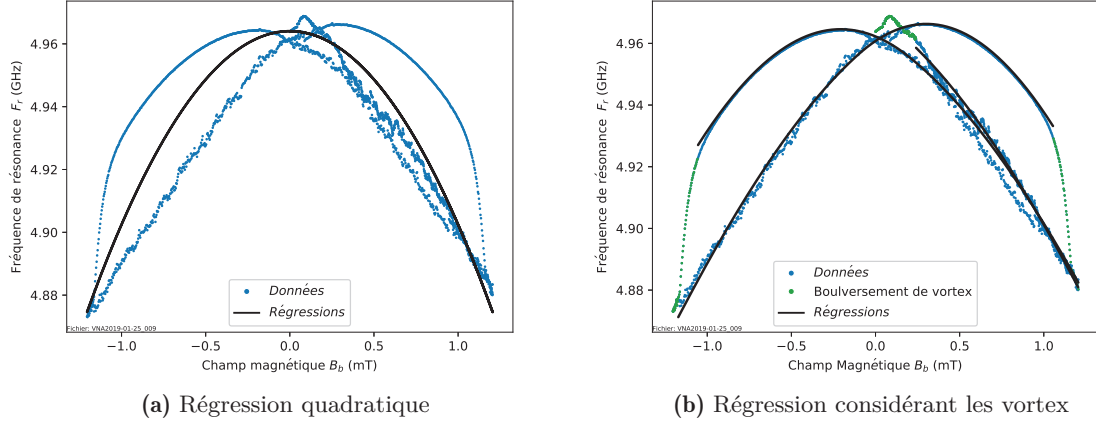


Figure 5.3 Description de la réponse du résonateur exposé au champ magnétique B_b créée par la bobine secondaire : principalement, perpendiculaire au résonateur.

présentés au tableau 5.3.

Paramètre	Valeur $B_b = 1.3 \rightarrow -1.1mT$	Valeur $B_b = -1.3 \rightarrow 1.1mT$	unités
L_m	235	235	nH
C	1.29	1.29	fF
δ_n	136E-9	1507-9	m
κ	60E-15	52E-15	N
η	710E-15	680E-15	m^2/s
B_{offset}	-110	190	μT

Table 5.3 Description de la réponse du résonateur exposé au champ magnétique B_b : résultats de régression.

5.1.3 Caractérisation de la bobine secondaire

Suite à la conception et la réalisation de la bobine supraconductrice secondaire, une caractérisation est complétée : les paramètres de conception telle que la taille ont été validés au moment de l'assemblage du montage expérimental tandis que les paramètres de sécurités tels que le courant maximal et le couple maximal n'ont pas été vérifiés par défaut de sécurité et de protection de l'instrumentation. Ainsi, ces paramètres ont été conçus avec des marges de sécurité importantes. Le seul paramètre important caractérisé est la constante

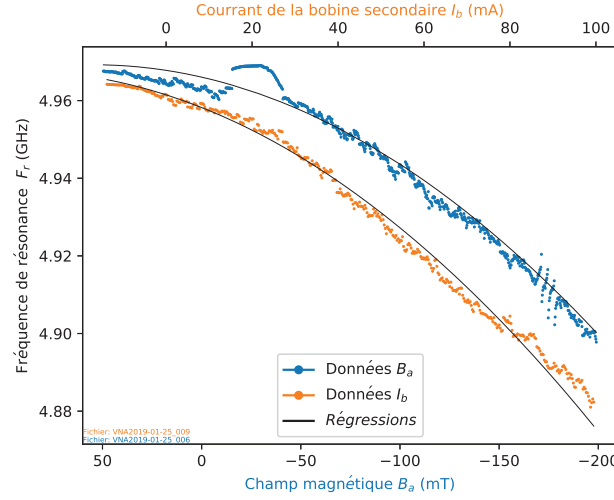


Figure 5.4 Régressions de la réponse du résonateur sous l'influence d'un champ magnétique Zeeman B_a ou un champ crée par le courant I_b de la bobine secondaire, permettant ainsi de déterminer la constante de champ de cette dernière. Seulement les parties quadratiques sont utilisées.

de champ $B_b = \alpha_c I_b$: les résultats de la sous-section précédente ont été utilisés afin de comparer le champ magnétique critique effectif d'une régression dans les régimes hautement quadratiques (figure 5.4a), où l'équation utilisée est $\omega_r = \omega_r(0)(1 - \frac{\alpha}{2}x^2)$. En supposant un champ magnétique critique identique pour ces deux mesures indépendantes (285.5 mT et 6.93 mA), une constante de champ approximative est obtenue : $\alpha \approx 12.1 \pm 0.3 \text{ mT/A}$, près de la valeur de 10.54 mT/A calculée.

La capacité de contrôler le champ magnétique perpendiculaire (B_b) est un élément essentiel de la caractérisation du transducteur. Par exemple, lors de la mise en place du système dans le réfrigérateur à dilution, une petite erreur d'enlignement du porte-échantillon cause le champ Zeeman B_a à ne plus être parallèle au transducteur. Ainsi, la seconde bobine, perpendiculaire au transducteur, permet d'annuler ce désalignement. La figure 5.5 montre un tel résultat avec et sans compensation. Ainsi, un désalignement entre le résonateur et la bobine principale est estimé à $\approx 0.05 \text{ rad}$.

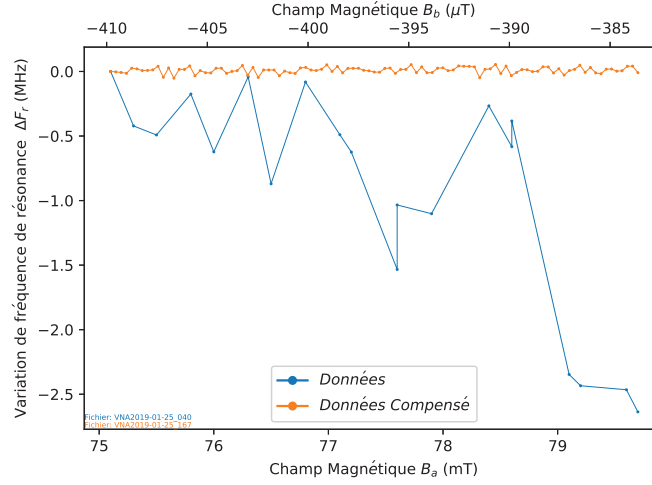


Figure 5.5 Compensation du désalignement du champ Zeeman B_a par l'application de champ magnétique perpendiculaire B_b .

5.2 Résonance paramagnétique électronique résonante

Une particularité intéressante du système résonateur supraconducteur et ensemble de spin en question est qu'il peut être utilisé comme détecteur EPR standard, ainsi que comme détecteur EPR large bande tel que présenté à la section suivante. En effet, tel que discuté à la section 1.2-1.3, le résonateur coplanaire est utilisé afin d'amplifier le signal dans le mode résonant et ainsi augmenter l'interaction entre ses photons et l'ensemble de spins. Bien que cette interaction soit très bien décrite dans le domaine de l'information quantique dans le régime à petit nombre photons, cette description n'est pas triviale pour les mesures complétées. Le nombre de photons moyen dans le résonateur est estimé à $\bar{n} \approx 1\text{E}6$ photons (éq. 5.2, $P_a = -106$ dBm).

$$\bar{n} = \frac{P_a \kappa_{\text{in}}}{\hbar \omega_r (\kappa/2)^2} \quad (5.2)$$

Ainsi, l'explication classique détaillée à la section 1.3 est adéquate : la susceptibilité magnétique $\chi = \chi' + i\chi''$ de l'échantillon est sondée par une mesure dispersive. Le champ magnétique Zeeman B_a a été rampé autour d'une transition électronique d'intérêt et pour chacun de ces champs, le spectre du résonateur a été mesuré afin d'en extraire la fréquence de résonance (χ') et le facteur de qualité (χ''). La figure 5.6 démontre un exemple d'une telle mesure, où les transitions $|g\rangle \rightarrow |e\rangle$ des centres NV dans le diamant sont sondées. Cette mesure est particulièrement intéressante puisque l'orientation du dispositif fait en sorte que

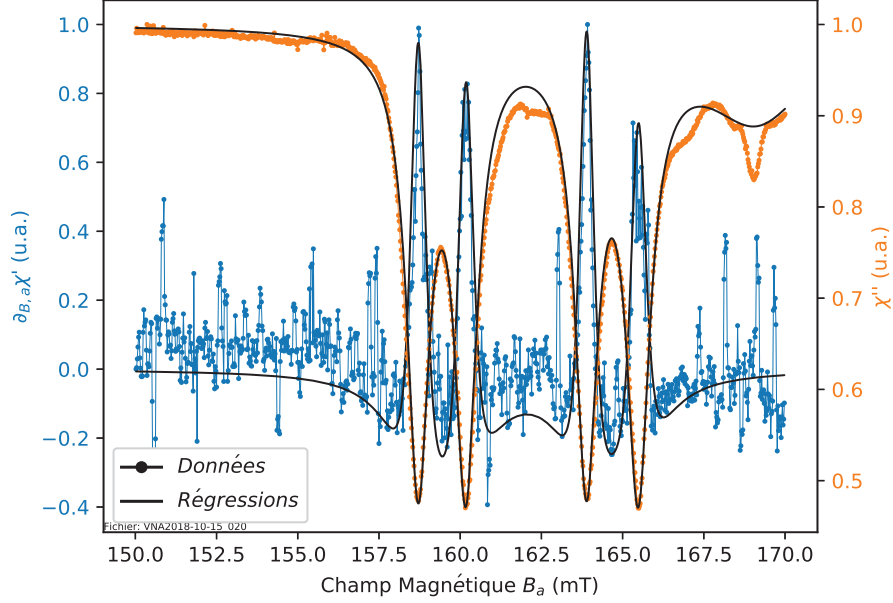


Figure 5.6 Description de la susceptibilité magnétique d'un ensemble de spins par une mesure dispersive par le biais d'un résonateur supraconducteur. La résonance étudiée est la transition $|g\rangle \rightarrow |e\rangle$ des centres NV dans le diamant.

les quatre orientations de centres NV sont visibles et distinctes.

Afin d'augmenter la visibilité des résultats de la susceptibilité magnétique, deux manipulations du signal expérimental sont utilisées : le signal est d'abord dérivé en fonction du champ magnétique Zeeman B_a pour la partie réelle de la susceptibilité magnétique χ' , suivi d'une moyenne mobile. Ces manipulations sont nécessaires afin de compenser pour le bruit associé à la grande sensibilité du résonateur aux effets de vortex. Ces données sont en très bonnes correspondances avec le modèle de Bloch 1.10, dans l'approximation où le champ d'excitation B_1 est petit et ainsi la largeur de raie est $\Gamma^{-1} = \gamma_e T_2$ (éq. 1.15), telle que soulignée par les régressions de la figure 5.6. Les paramètres de régressions sont identifiés à la table 5.4, où la fréquence du résonateur est de 4.972 GHz. Ces régressions ont permis d'estimer le temps de relaxation T_2 moyen pour l'ensemble de spins à 84 ± 2 ns. Cette valeur est relativement faible, ce qui indique une inhomogénéité de l'excitation de l'ensemble de spin.

espèce	$\Gamma_{\chi'}(\mu\text{T})$	$\Gamma_{\chi''}(\mu\text{T})$	$B_{S,\chi'}(\text{mT})$	$B_{S,\chi''}(\text{mT})$
A	444	442	165.52	165.47
B	416	416	163.90	163.88
C	422	421	160.22	160.17
D	420	419	158.69	158.70

Table 5.4 Susceptibilité magnétique d'un ensemble de spins par une mesure dispersive : résultats de régression.

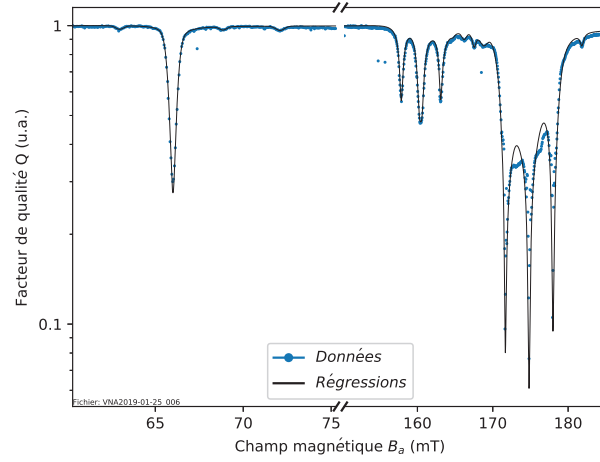


Figure 5.7 Caractérisation de l'ensemble de spins par la modulation du facteur de qualité (soit la partie imaginaire de la susceptibilité magnétique).

5.2.1 Caractérisation résonante de l'ensemble de spins

Suivant la démonstration de spectroscopie RPE d'un ensemble de spins de type centre NV dans le diamant, une seconde série d'expériences fut complétée afin d'explorer le régime large bande. Cette seconde expérience fut complétée lors d'une seconde ronde de mesure, où le diamant fût orienté de façon légèrement différente causant ainsi deux des orientations NV de se chevaucher. De plus, un second type de défaut est étudié, soit les centres P1 dans le diamant (section 4.1).

Le spectre RPE résonant de ce système est présenté à la figure 5.7 par la composante complexe de la susceptibilité magnétique, soit le facteur de qualité du résonateur. Ce spectre est particulièrement intéressant puisqu'il révèle plusieurs transitions électroniques et nucléaires du système. En effet, à bas champ magnétique principal B_a , une grande

résonance ($B_{\text{NV, gf}} = 66 \text{ mT}$) correspondant à la superposition de quatre transitions $|g\rangle \rightarrow |f\rangle$ provenant des quatre espèces de centre NV. Près de cette transition se trouve deux résonances satellites correspondant aux spins nucléaires d'un atome ^{13}C avec un couplage hyperfin de $A = 2.940 \pm 0.09 \text{ mT}$.

Similairement, un second pic satellite du côté du champ croissant est présent, lequel n'a pas pu être identifié. Cependant, une observation intéressante est la nécessité de la superposition d'une régression lorentzienne asymétrique et une régression gaussienne afin de décrire la résonance $|g\rangle \rightarrow |f\rangle$ ainsi que de simples résonances gaussiennes pour les pics satellites. Ces observations correspondent à l'hypothèse d'une excitation inhomogène de l'ensemble de spins causé par le champ d'excitation B_1 non uniforme créé par le résonateur tel que décrit à la section 3.1.

Une analyse similaire est complétée pour la transition $|g\rangle \rightarrow |f\rangle$ des centres NV où seulement trois résonances sont observées : ($B_{\text{NV, ge, A}} = 157.9 \text{ mT}$), ($B_{\text{NV, ge, B\&C}} = 160.2 \text{ mT}$), ($B_{\text{NV, ge, D}} = 163.1 \text{ mT}$). Similairement au résultat précédent de l'expérience où les quatre orientations étaient visibles, la résonance est bien décrite par une régression lorentzienne.

Un artéfact intéressant de cette mesure, causé par le grand nombre de photons dans le résonateur créant une population thermique de spins en plus du fait que les vecteurs propres de l'Hamiltonien des centres NV dans cette orientation spécifique de champ magnétique ne sont pas des vecteurs propres du moment angulaire ($|g\rangle, |e\rangle|f\rangle \neq |0\rangle, |1\rangle, |-1\rangle$), est la présence de transition «interdite» $|e\rangle \rightarrow |f\rangle$: ($B_{\text{NV, ef, A}} = 164.7 \text{ mT}$), ($B_{\text{NV, ef, B}} = 166.2 \text{ mT}$), ($B_{\text{NV, ef, C}} = 168.8 \text{ mT}$), ($B_{\text{NV, ef, D}} = 171.2 \text{ mT}$). Par contre, ces résonances sont décrites par des régressions gaussiennes indiquant une inhomogénéité lors de l'excitation.

Finalement, trois grandes résonances correspondant aux centres P1 dans le diamant sont visibles au champ ($B_{\text{P1}} = 174.8 \text{ mT}$) avec un couplage hyperfin nucléaire $A_{\text{P1, }^{14}\text{N}} = 3.16 \pm 0.01 \text{ mT}$, ainsi que deux faibles résonances satellites additionnelles démontrant un couplage hyperfin approximatif $A_{\text{P1, inconnu}} = 7.2 \pm 0.1 \text{ mT}$ et possiblement, deux faibles résonances additionnelles entre les résonances principales des centres P1 (sans régression). Chacune de ces résonances est décrite par une régression gaussienne, sauf les trois résonances principales lesquels ont une contribution additionnelle lorentzienne.

Les régressions discutées pour les données spectre RPE résonant présentées à la figure 5.7 et les paramètres résumés à la table 5.5 témoignent d'un fait intéressant : les faibles résonances sont majoritairement décrites par une régression gaussienne causée par une inhomogénéité du champ magnétique d'excitation et autres inhomogénéités dans le spécimen, tandis que les résonances prononcées sont principalement décrites par une superposition

d'une gaussienne et une lorentzienne. Cette dernière observation peut être attribuée à deux régimes de détection : un premier inhomogène dans la masse du spécimen où le champ magnétique d'excitation B_1 est hautement inhomogène tel que décrit aux équations 3.1-3.3, et un second régime où le résonateur sonde seulement une partie de l'ensemble de spins de façon homogène, attribuée aux spins près de la surface et près du conducteur central. Une étude future où la distribution spatiale de l'ensemble de spins est préalablement connue pourrait vérifier cette hypothèse.

Transition	espèce	$\mathbf{B}_S/\mathbf{A}_{\text{hfs}}$ (mT)	Γ (μT)	T_2 (ns)
$NV_{ g\rangle\rightarrow f\rangle}$	$ABCD_L$	66.0	410	87
	$ABCD_G$	66.0	250	121
	$^{13}C_G$	2.94 ± 0.09	210	144
$NV_{ g\rangle\rightarrow e\rangle}$	A_L	157.8	480	74
	BC_L	160.6	570	62
	D_L	163.1	450	79
$NV_{ e\rangle\rightarrow f\rangle}$	A_G	164.7	200	152
	B_G	166.2	300	101
	C_G	168.7	500	61
	D_G	171.2	200	152
P1	A_L	174.8	500	71
	A_G	174.8	2500	12
	$^{14}N_L$	3.16 ± 0.01	425 ± 25	84 ± 5
	$^{14}N_G$	3.16 ± 0.01	750 ± 50	41 ± 3
	Inconnu _G	7.2 ± 0.1	650	47

Table 5.5 Caractérisation de l'ensemble de spins par la modulation du facteur de qualité : résultats de régression.

5.2.2 Détermination de l'orientation de l'ensemble de spins

Finalement, à partir des résultats précédents, il est possible de déterminer l'orientation de l'ensemble de spins NV par rapport au champ magnétique appliqué et ainsi, déterminer les paramètres de l'Hamiltonien de spins. Cependant, afin d'augmenter la fiabilité de la

régression de détermination d'angles, la grande sensibilité du résonateur en champ magnétique transverse est exploitée B_b .

L'application d'un faible champ transverse modifie la fréquence du résonateur, permettant la prise du spectre RPE résonant à différentes fréquences résonantes. Ainsi, le résonateur devient une sonde RPE accordable. Par souci de conservation du facteur de qualité du résonateur, la plage de fréquence utilisée est de 4.675 à 5.100 GHz, correspondant à un champ magnétique transverse de -0.6 à 0.16 mT. Les données sont présentées à la figure 5.8 où la partie imaginaire de la susceptibilité magnétique est superposée à la fréquence de sonde et dont l'amplitude est ajustée afin de faciliter la lecture. À partir de ces données, une régression a permis la détermination des paramètres des Hamiltoniens de spins pour les centres NV et P1. Ces paramètres sont décrits au tableau 5.6.

Défauts	paramètre	valeur	unités
Centres NV	θ	0.7	deg
	ϕ	0.9	deg
	g	2.015	
	D	2.87	GHz
	E	4.7	MHz
Centres P1	g	2.016	
	A	93	MHz

Table 5.6 Accordement de fréquence de résonance pour la détermination de l'orientation de l'ensemble de spins : résultats de régression.

Il est important de noter que les valeurs de couplage reportées sont différentes de celles reportées par Dany Lachance-Quirion dans le même système [8]. Cette disparité est principalement expliqué par les différentes méthodes d'extraction utilisée.

5.2.3 Caractérisation du couplage dispersif

Tel que décrit à la section 3.3.1, une interaction dispersive décrite par la théorie cQED est une seconde forme de la description du signal RPE près de la résonance entre le résonateur et un système à deux niveaux tel qu'une transition électronique. Particulièrement, les équations 3.18 et 3.19 décrivent une relation entre la largeur de bande du résonateur et l'amplitude du couplage dispersif. Ainsi, prenant en compte uniquement la largeur de bande des données

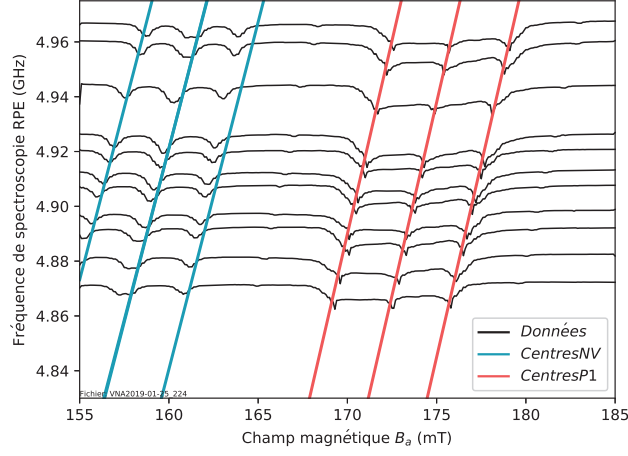


Figure 5.8 Signaux RPE résonnant pour les transitions de centres NV $|g\rangle \rightarrow |e\rangle$ et centres P1, recueillis à différentes fréquences de résonances permises par l'application de différents champs magnétiques secondaires B_b .

présentées à la figure 5.7, la contribution de la largeur de bande provenant de l'interaction dispersive est extraite. Ces données sont présentées à la figure 5.9 et les facteurs de couplage g_x extrait des régressions sont présentés au tableau 5.7 et où $^{14}N_{1,2}$ dénomme respectivement les transitions nucléaires satellites des centres P1 à 171.63 et 177.97 mT.

Transition	espèce	$g_x(MHz)$
$NV_{ g\rangle \rightarrow e\rangle}$	A	2.870
	B	2.961
	C	2.961
	D	2.871
P1	$^{14}N_1$	3.30
	A	3.57
	$^{14}N_2$	3.91

Table 5.7 Largeur de bande du résonateur en résonance avec un ensemble de spins : résultats de régression

Il est important de noter que les valeurs de couplage dispersif g_x obtenues diffèrent des valeurs obtenues par Dany Lachance-Quirion est estimé à $\approx g/2\pi \approx 2.32$ MHz [8]. Cette discordance peut être expliquée par l'opération dans un régime différent en termes

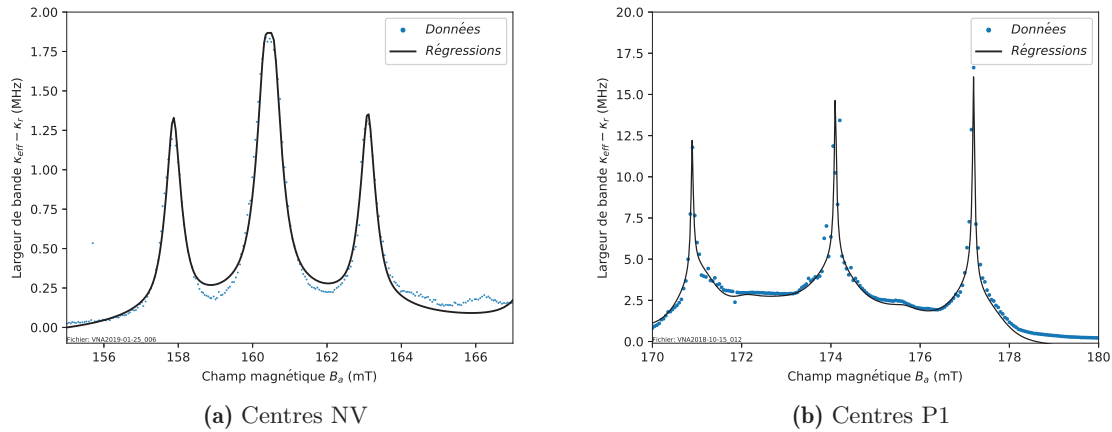


Figure 5.9 Régression de la largeur de bande du résonateur en résonance avec un ensemble de spins.

de fréquence, puissance ou champ magnétique. En effet, le terme de couplage comprend les informations du mode magnétique du résonateur 3.17.

5.3 Résonance paramagnétique électronique non résonante

Cette section explore la possibilité d'utiliser le dispositif présenté comme transducteur pour la résonance magnétique large bande. Plusieurs marqueurs du phénomène de couplage sont étudiés, permettant ainsi de caractériser le transducteur et ainsi de présenter une preuve de concept d'une méthode alternative de résonance magnétique. Il est important de noter que le détecteur utilisé n'est en aucune façon optimisé ou conçu pour cette application et ainsi, une génération future pourrait grandement améliorer les résultats suivants.

Description de mesure typique

Contrairement à une expérience RPE typique où la fréquence de mesure est fixe et le champ magnétique est rampé autour d'une résonance électronique, le transducteur permet l'inverse : opérer à champ magnétique fixe et varier la fréquence d'excitation.

La mesure est dite semi-continue puisque l'information est contenue dans la réponse d'une excitation continue de l'ensemble de spins, malgré une méthodologie pulsée. En fait, les spectres obtenus par mesure continue soit en rampant la fréquence d'excitation et en mesurant une variation de la fréquence du résonateur, sont fortement asymétriques vers la

direction de rampe. Cette observation est associée au long temps de relaxation $T_1 \approx 110$ s de l'ensemble de spins. Il est possible de ralentir la prise de mesure afin de permettre la relaxation, cependant cette solution a comme conséquence d'augmenter le bruit provenant de vortex dans le détecteur.

Une méthode de mesure pulsée dénommée *excitation-relaxation* est donc adoptée, où l'ensemble de spins est excité à saturation (occupation égale entre les niveaux de la transition étudiés), puis la fréquence d'excitation est changée de façon à ne plus exciter la transition. Par conséquent, l'ensemble de spins relaxe à son état fondamental. Ce phénomène est observé par la réponse temporelle de la fréquence du résonateur, laquelle est extraite d'une série de mesures du spectre du résonateur. Cette procédure de changement de fréquence est utilisée afin d'éviter de perturber l'équilibre thermique du détecteur. Après la saisie d'une courbe de relaxation, où l'évolution temporelle de la fréquence de résonance reflète la polarisation de l'ensemble de spins, une régression exponentielle est utilisée afin d'extraire le signal RPE : $\omega_r(B_\perp + M_\perp(0)) - \omega_r(B_\perp + M_\perp(B_1))$, tel qu'illustré à la figure 5.10. Cette séquence d'environ 200 secondes résulte en un seul point de signal RPE à une fréquence et un champ magnétique donné.

De plus, une calibration du détecteur est effectuée à chaque changement de champ magnétique (sauf si spécifié autrement) afin de conserver la même sensibilité en champ magnétique. En effet, la tangente de la dépendance en champ magnétique du transducteur ainsi que son hystérèse (figure 3.3) peuvent changer drastiquement le signal recherché. Ainsi, le résonateur est toujours opéré à un champ magnétique transverse B_b de sorte que la fréquence de résonance soit située à 4.910 GHz, soit une sensibilité en champ magnétique perpendiculaire de $\Delta F_r / \Delta B_\perp = 90 \text{ kHz} / \mu T_\perp$ (exemple : figure 5.4).

5.3.1 Démonstration de détection hors résonance

Spectre de résonance paramagnétique électronique hors résonance

L'utilité première de ce transducteur est de permettre la prise de donnée RPE hors résonance. À ce but, le spectre d'une transition électronique est reconstruit en complétant la procédure d'excitation-relaxation pour une série de fréquence de champ d'excitation B_1 , à un champ Zeeman B_a donné.

Un tel spectre, recueilli à un champ magnétique principal $B_a = 115 \text{ mT}$ où plusieurs transitions et plusieurs espèces de spins sont observées, est présenté à la figure 5.11. Les quatre orientations des centres NV sont visibles pour les transitions $|g\rangle \rightarrow |e\rangle$ à la figure 5.11a. Tout comme à la mesure RPE résonante, ces transitions sont bien décrites par une

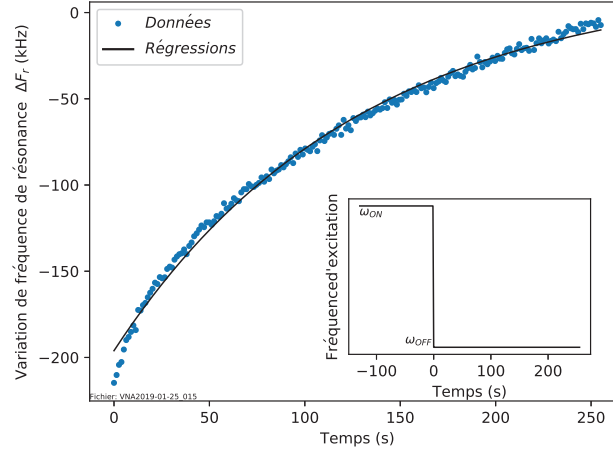
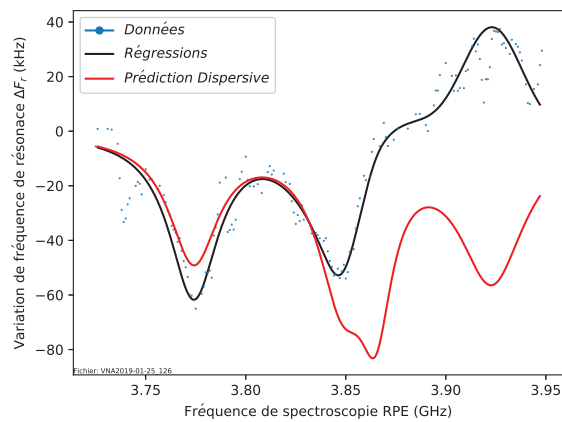
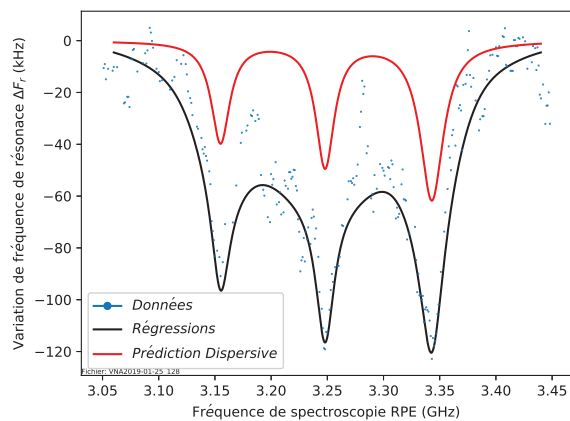


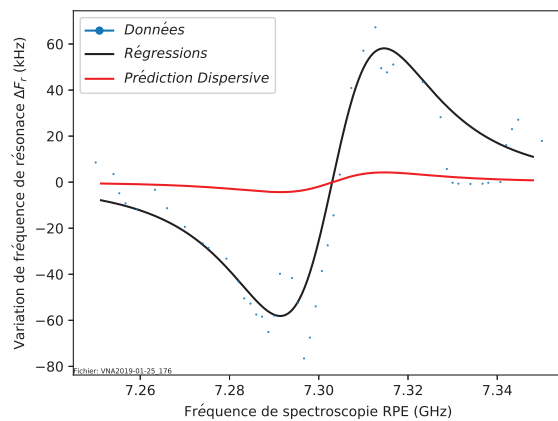
Figure 5.10 Illustration d’une mesure typique où l’amplitude de résonance magnétique est l’amplitude de la régression exponentielle. L’exemple présenté est une relaxation en résonance avec la transition de centres NV A à $B_a = 155$ mT. Les valeurs de temps de relaxation T_1 et l’amplitude de résonance extraite sont respectivement 126 s et 214 kHz.

superposition de formes lorentzienne et gaussiennes tel que décrit par la magnétisation des spins (éq. 1.9) et discutés à la section 5.2.1. Le même type de régression est obtenu pour les transitions de défauts azotés de type P1 illustré à la figure 5.11b. De plus, la transition de centres NV $|g\rangle \rightarrow |f\rangle$ est mesurée à un champ magnétique beaucoup plus élevé que lors d’une interaction résonante (66 mT). Cette signature illustrée à la figure 5.11c contient une superposition des spectres de chacune des quatre orientations de centres NV, lesquelles sont entièrement décrites par des régressions lorentzienne. Les résultats des régressions sont présentés au tableau 5.8. Contrairement à l’étude RPE résonante, aucune attention n’a été portée sur les isotopes près des transitions de centres NV et P1.

En plus des résultats expérimentaux et des régressions de caractérisation de l’ensemble de spins, les courbes de prédiction du signal dispersif sont présentées en rouge. Celles-ci ont été calculées à partir de l’amplitude du couplages décrites au tableau 5.7. Ces premiers résultats démontrent la capacité de mesurer une signature RPE à un important décalage entre la fréquence d’excitation et la fréquence du résonateur ΔF_r , atteignant jusqu’à 2.4 GHz. L’amplitude du signal mesuré indique la présence d’un couplage au-delà du couplage dispersif transverse (cQED). En effet, ne considérant que la contribution dispersive pour la transition $|g\rangle \rightarrow |f\rangle$ de centres NV, l’amplitude attendue ne serait que de 4.24 kHz, soit 7.3% du signal mesuré. Aini, le signal magnétométrique représente 92.7% du signal mesuré, soit 12.7 fois plus que le signal dispersif attendu. Similairement pour les transitions P1, les

(a) NV $|g\rangle \rightarrow |e\rangle$ 

(b) P1

(c) NV $|g\rangle \rightarrow |f\rangle$ **Figure 5.11** Spectres RPE large bande $B_a = 115$ mT.

contributions dispersives représentent respectivement 40.4%, 41.2% et 50.7% du signal mesuré. La contribution dispersive est expliquée par un grand couplage g_x causé par un grand nombre de spins, mais n'est pas suffisante pour expliquer le résultat. De plus, le signal magnétométrique est moins prononcé que le cas précédent puisque les électrons libres de ces défauts s'alignent avec le champ magnétique Zeeman de sorte que la contribution du champ magnétique des spins perpendiculaire au transducteur est faible. Une exploration de ces différentes contributions est présentée à la section 5.3.2. Bref, ce résultat est significatif pour la démonstration de la technologie et encourage l'exploration future.

Dans un autre ordre d'idée, les temps de relaxation T_2 extraits sont significativement plus bas que ceux extraits lors de l'exploration résonante (section 5.2). Cette observation peut être attribuée au terme de magnétisation où la largeur de raie spectroscopique de l'ensemble de spins est proportionnelle à la puissance de champ d'excitation B_1 (eq. 1.10). En effet, l'amplitude du champ appliqué hors résonance est beaucoup plus faible que lorsqu'à la résonance du résonateur.

5.3.2 Caractérisation du détecteur

Dépendance en puissance d'excitation

Une conséquence du signal RPE hors-résonant prédit (eq. 3.15) est une saturation en puissance d'excitation. C'est pourquoi, afin de vérifier la validité du signal prédit, une étude de l'amplitude du signal RPE en fonction de la puissance d'excitation a été complétée lors d'une excitation résonante d'une transition électronique ($\omega_B = \omega$). Les résultats de trois régressions sont présentés aux figures 5.12a, 5.12b & 5.12c illustrant respectivement les transitions $|g\rangle \rightarrow |e\rangle$ A et B à champ magnétique Zeeman $B_a = 85\text{mT}$ et finalement P1 à champ Zeeman $B_a = 100\text{mT}$.

$$\text{Signal} \propto \frac{\gamma_e^2 B_1^2 T_1 T_2}{1 + \gamma_e^2 B_1^2 T_1 T_2 + (\omega_B - \omega)^2 T_2^2} \quad (5.3)$$

$$\text{Régression} = A \frac{fP}{1 + fP} \quad (5.4)$$

où P est la puissance du signal d'excitation et A est un préfacteur de l'amplitude du signal.

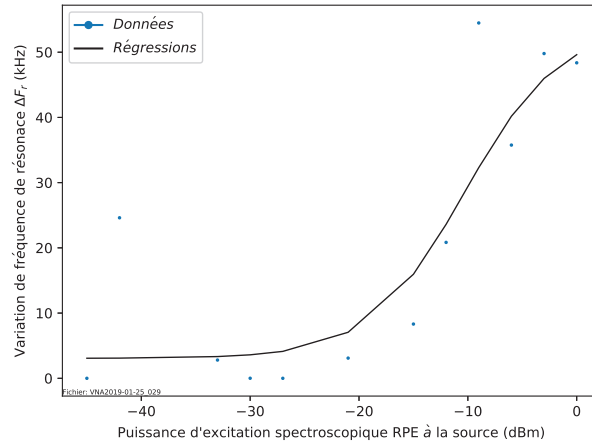
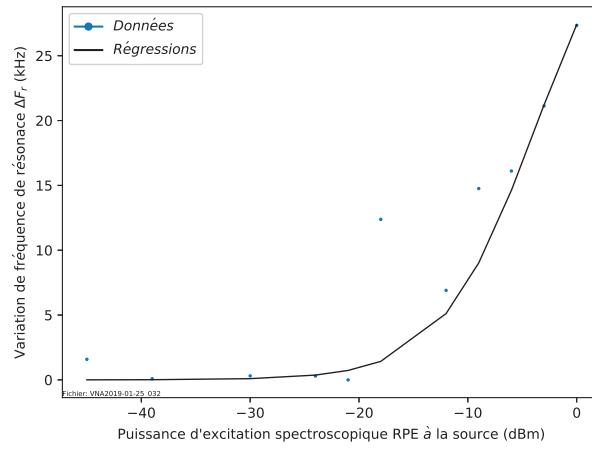
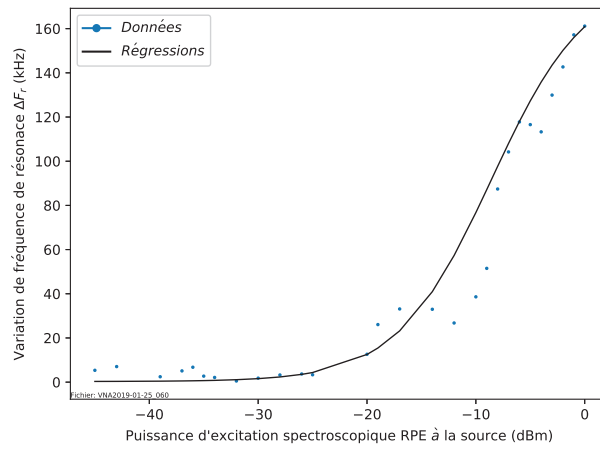
Puisque le champ magnétique est directement proportionnel au voltage appliqué aux bornes du guide d'ondes coplanaire (eq. 3.1 - 3.3) et ainsi, à la racine de la puissance appliquée, une simple régression de saturation de puissance avec deux facteurs est utilisée (eq. 5.4). Le facteur f , associé à la puissance, comprend : les temps de relaxation T_1 et T_2 (eq.

Transition	espèce	F_S/A_{hfs} (GHz)	Γ (MHz)	T_2 (ns)	ΔF_{sr} (GHz)
$NV_{ g\rangle \rightarrow f\rangle}$	A_L	7.301	40	25	2.391
	B_L	7.302	40	25	2.392
	C_L	7.404	40	25	2.394
	D_L	7.305	40	25	2.395
$NV_{ g\rangle \rightarrow e\rangle}$	A_L	3.774	30	33	1.136
	A_G	—	—	—	—
	B_L	3.848	30	33	1.062
	B_G	3.848	20	43	1.062
	C_L	3.865	20	50	1.045
	C_G	3.865	20	43	1.045
	D_L	—	—	—	—
	D_G	3.923	15	57	0.987
$P1$	A_L	3.248	20	50	1.662
	A_G	3.248	80	11	1.662
	$^{14}N_L$	0.094 ± 0.001	23 ± 2	44 ± 4	1.661 ± 0.09
	$^{14}N_G$	0.094 ± 0.001	20 ± 1	43 ± 2	1.661 ± 0.09

Table 5.8 Spectres RPE large bande : résultats de régression.

5.5), le carré du ratio gyromagnétique, l'atténuation entre la source et le détecteur (éq. A.7), la distribution spatiale et spectrale du signal hors résonance, et finalement, la conversion entre la puissance dans le résonateur et le champ d'excitation produit (éq. 3.1 - 3.3). Lors de la conception d'une prochaine génération de transducteur, une attention particulière doit être portée sur ce facteur puisqu'il dicte l'amplitude signal détecté, le ratio signal sur bruit du détecteur ainsi que l'uniformité de la réponse spectrale de l'excitation RPE.

La régression utilisée est en excellente concordance avec les données présentées. Cependant, la quantité de données recueillies ne permet pas d'émettre de conclusion sur la correspondance entre le facteur f et les différents aspects mentionnés. Une future étude exhaustive saura vérifier cette hypothèse.

(a) NV $|g\rangle \rightarrow |e\rangle$ A(b) NV $|g\rangle \rightarrow |e\rangle$ B

(c) P1

Figure 5.12 Dépendance de l'amplitude du signal RPE en puissance d'excitation B_1 .

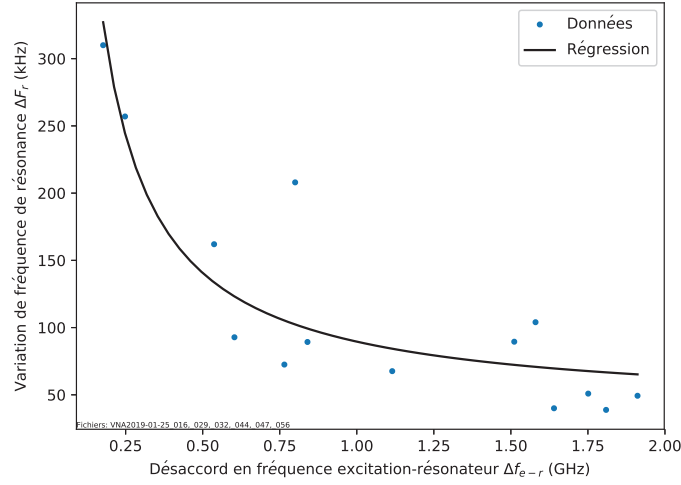


Figure 5.13 Démonstration d’une détection de polarisation de l’ensemble de spins.

Décalage entre fréquences de spectroscopie et fréquence du résonateur

Afin de confirmer l’existence du couplage magnétométrique entre le transducteur et l’ensemble de spins, une série de mesures excitation-relaxations ont été complétées en résonance avec les transitions $|g\rangle \rightarrow |e\rangle$ des espèces A et B de l’ensemble de spins NV. La puissance d’excitation utilisée fut la moitié de la puissance au point d’inflexion de la courbe de saturation (figure 5.12). Ces mesures ont été prises sur une large plage de champ magnétique principal B_a de façon à changer le décalage entre la fréquence de transition de l’ensemble de spins et celle du résonateur.

La figure 5.13 illustre ces résultats pour un décalage jusqu’à près de 2GHz où le signal dispersif (cQED) (eq. 3.18) est peu significatif. En effet, une régression (eq. 5.5) correspondante à un signal dispersif superposé à un signal constant de magnétisation est de bonne concordance avec les données recueillies. Les facteurs de régression obtenus sont $M = 38 \text{ kHz}$ et $g/2\pi = 2.851 \text{ MHz}$. De 2 à 5% près selon l’espèce de l’ensemble de spins, cette valeur concorde avec la valeur obtenue par régression de la largeur de bande du résonateur lors d’une interaction résonante (section 5.2.3).

$$\text{Signal} \propto \frac{g^2}{2\pi\Delta f_r} + M \quad (5.5)$$

Champ magnétique perpendiculaire

Une seconde forte suggestion de l'observation du couplage magnétométrique est la forte corrélation du signal RPE sur la tangente de la dépendance de la fréquence du résonateur en champ magnétique perpendiculaire (éq. 2.9-2.12). Ainsi, une mesure de la sensibilité du détecteur en fonction du champ perpendiculaire B_b est effectuée selon la procédure d'excitation-relaxation. Le champ magnétique Zeeman (B_a) est fixé afin de limiter les variations de signal dispersif et l'ensemble de spins est excité à leur fréquence de transition. Cette mesure est complétée à une fréquence d'excitation fixe puisque sur l'intervalle de champ magnétique secondaire B_b utilisée, le changement d'énergie de la transition est négligeable comparativement à sa largeur de raie.

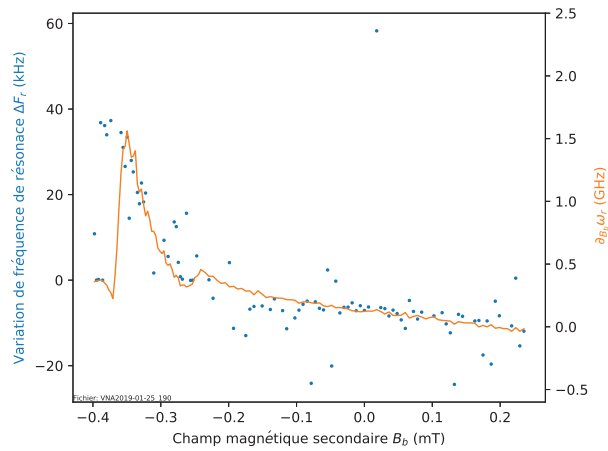
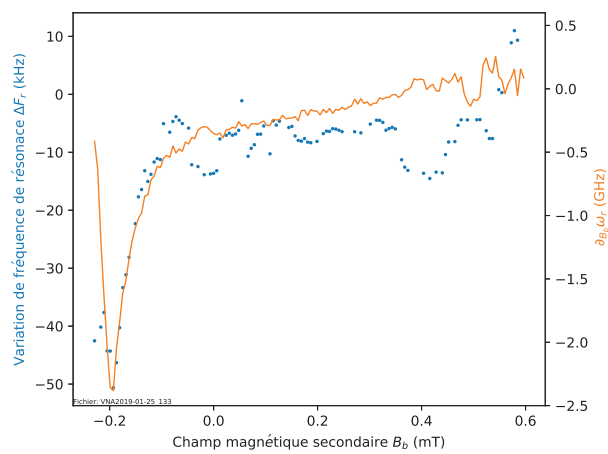
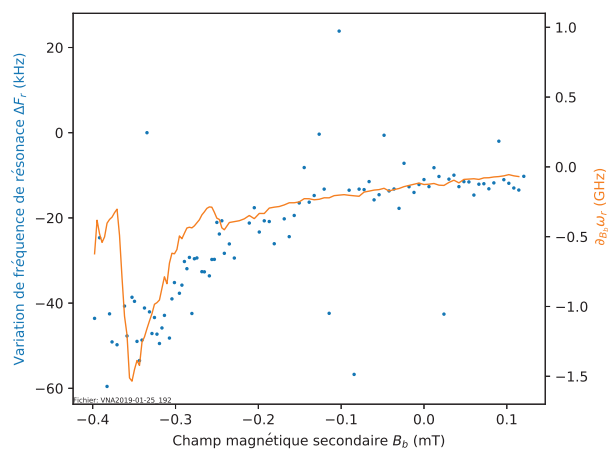
Ces données, superposées à la dérivée en champ magnétique du résonateur $\partial_{B_b} \omega_r$, sont illustrées aux figures 5.14a,b&c représentant respectivement à champ magnétique Zeeman $B_a = 130$ mT, 115 mT et 90 mT, correspondant à un décalage spin-résonateur de $\delta F_{rs} = 0.987$ GHz, 1.135 GHz et 1.491 GHz.

Une particularité intéressante de ces données est la correspondance du signal RPE et de la tangente du résonateur autant dans la partie décrite par les théories de la section 3.2 et illustrée à la figure 5.3b que dans la région de bouleversement de vortex. Ainsi, le signal magnétométrique semble être insensible au changement de conformation de vortex, sous la supposition d'une opération où le seuil de bruit permet l'extraction du signal RPE.

5.3.3 Spectre très large bande

Finalement, une démonstration des capacités du détecteur est présentée à la figure 5.15. Les données ont été recueillies selon une mesure «rapide» où la procédure d'excitation-relaxation n'a pas été utilisée par souci de temps. Au lieu, ces mesures ont été complétées de façon continue par une rampe en fréquence d'excitation pour chaque champ magnétique appliqué. À chacune des fréquences d'excitation, un spectre du résonateur a été recueilli afin d'en extraire la fréquence du résonateur. Une série de manipulation de données telle que la réjection de mauvaises régressions, la correction de discontinuités causée par l'entrée de vortex dans le dispositif, une moyenne mobile ainsi que la dérivée de la modulation de la fréquence de résonance sont utilisées afin d'illustrer le signal RPE.

Il est ainsi possible de suivre plusieurs transitions électroniques telles que les quatre orientations de centre NV pour les transitions $|g\rangle \rightarrow |e\rangle$ et $|g\rangle \rightarrow |f\rangle$ ainsi que les centre P1 sur une grande plage de champ magnétique. D'autres données à faibles champs magnétiques Zeeman B_a ont été mesurées, cependant aucun signal concret a été observé.

(a) $B_a = 130$ mT(b) $B_a = 115$ mT(c) $B_a = 90$ mT**Figure 5.14** Dépendance de l'amplitude du signal RPE en champ perpendiculaire.

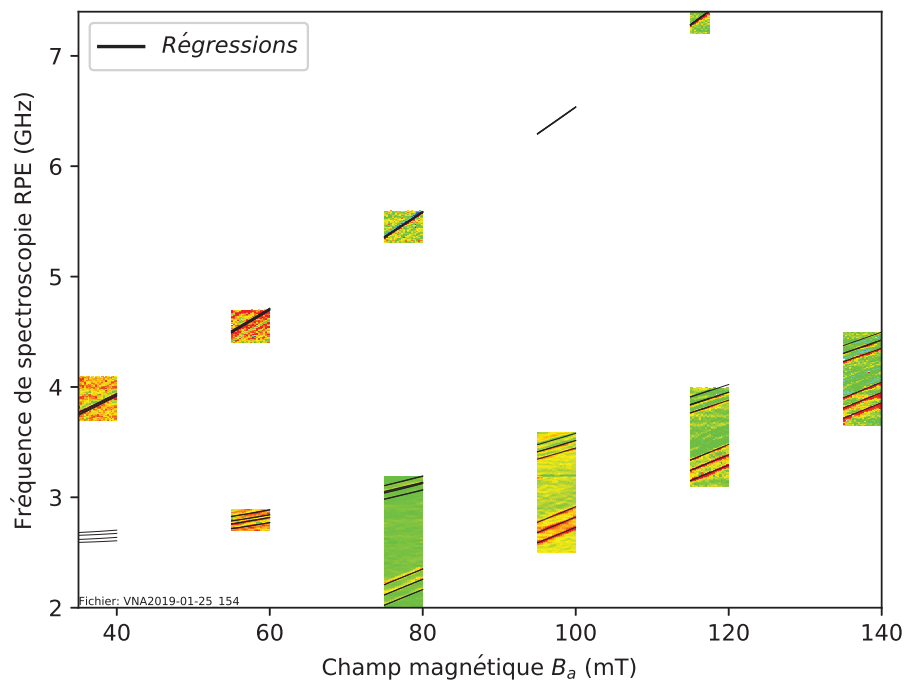


Figure 5.15 Spectre très large bande permettant de suivre les transitions électroniques des centres NV et centres P1.

Une régression des niveaux de transitions de centres NV et P1 ont été superposés aux données, permettant ainsi d'extraire l'orientation du système ainsi que les paramètres des différents Hamiltoniens. Il est important de noter que les régressions des transitions électroniques sont discontinuées à chaque sous-diagramme puisque ceux-ci ont été complétés à des champs perpendiculaires B_b différents, lesquels modifient légèrement les énergies de transition. Les résultats de cette régression sont présentés au tableau 5.9, lesquels correspondent exactement aux valeurs estimées via le signal RPE résonant.

Défauts	paramètre	valeur	unités
Centres NV	θ	0.7	deg
	ϕ	0.9	deg
	g	2.015	
	D	2.87	GHz
	E	4.7	MHz
Centres P1	g	2.016	
	A	93	MHz

Table 5.9 Spectre très large bande : résultats de régression.

Chapitre 6

Développement et perspectives

Les travaux présentés dans cette mémoire se concentrent sur l'exploration du couplage magnétique entre un ensemble de spin et un transducteur magnétique prenant la forme d'un résonateur supraconducteur de type guide d'ondes coplanaire. De même, ces travaux, en parallèle aux travaux de Dany Lachance-Quirion et ceux du brevet, complètent la preuve de concept de cette technologie, avec des résultats prometteurs encourageant la poursuite du projet. Et ce, malgré le fait que l'entièreté des données et analyse sont basées sur un seul dispositif conçu pour un projet complètement différent.

Malgré le fait qu'aucune analyse de développement et d'optimisation du détecteur n'a été exhaustivement complétée, quelques avenues ont été considérées et seront discutées de façon qualitative dans ce chapitre. Finalement, prenant en compte ces directions d'optimisation, et prenant en compte les expériences complétées, une courte description des perspectives potentielles sera discutée.

6.1 Considérations pour développement futur

6.1.1 Système et mesure

Considérons d'abord quelques aspects architecturaux et expérimentaux du système utilisé, lesquels pourraient grandement bénéficier de quelques modifications. Bien que ces modifications n'augmenteraient pas la sensibilité du système ni les performances de celui-ci, dans l'optique de la conception d'un produit, elles permettront d'améliorer la qualité des données en termes de fiabilité et de reproductibilité en plus de simplifier la méthodologie de mesure et d'analyse.

Considérations large bande

L'aspect large bande du transducteur pose une problématique importante à l'analyse puisque l'amplitude du champ magnétique d'excitation B_1 est limitée par le facteur de qualité du résonateur. En effet, la puissance transmise est non-linéaire avec le décalage fréquentiel entre le champ d'excitation et le résonateur, ce qui entraîne une excitation fréquentielle non uniforme de l'ensemble de spins.

Une première solution à cette problématique est la compensation de la puissance d'excitation en fonction du spectre de transmission du résonateur connu. Cependant, cette solution est imparfaite puisque la moindre partie résistive sur le chemin d'acheminement pourrait chauffer le résonateur et fausser le signal détecté. Cette situation est importante lorsqu'un résonateur de haut facteur de qualité est considéré, où plusieurs ordres de grandeur de puissances pourraient être nécessaires pour compléter une mesure spectroscopique.

Une seconde solution est la conception d'une source de champ magnétique d'excitation séparée du résonateur, soit sous la forme d'un fil près de l'ensemble de spins ou encore par la modulation du courant dans une bobine englobant l'ensemble de spins. Cette première solution a comme inconvénient d'émettre un champ magnétique non-uniforme tandis que la seconde solution a comme inconvénient de perdre la capacité d'exciter localement un sous-ensemble de spins près de la surface.

Considérations magnétique

En plus de la dépendance en puissance du champ magnétique d'excitation B_1 , la description spatiale de ce dernier est nécessaire à la description du couplage à l'ensemble de spins. Une bonne description permettrait l'extrapolation de plusieurs paramètres additionnels lors de l'analyse de données. La description la plus fidèle est obtenue par simulations d'élément fini exhaustives, où l'inductance cinétique est prise en compte. Ainsi, un modèle numérique tel celui proposé par Brandt pourrait être utilisé (voir annexe A.2).

Sur un autre ordre d'idée, contrairement aux mesures complétées, il est nécessaire pour un système de résonance magnétique d'être conçu avec un système d'asservissement du champ magnétique Zeeman afin de s'assurer de la valeur du champ appliqué soit constante. Une implémentation simple de cette boucle de rétroaction est l'implémentation d'une série de croix de hall pour lire les champs magnétiques ainsi qu'un simple logiciel de correction pour l'asservissement.

Cette série de trois croix de Hall est nécessaire pour caractériser les trois axes d'un champ magnétique vectoriel entier, contrairement au système utilisé dans ce mémoire. Un tel

champ magnétique permettrait d’observer les ensembles de spins à différentes orientations et observer des anisotropies si présentes.

Considérations radiofréquences

Une bonne pratique pour tout montage radiofréquence est la connaissance de ses constituants : le paramètre S ou tout autre système de caractérisation de chacune des composantes doit être connu de façon à pouvoir isoler mathématiquement (de embedding [71]) la contribution de la composante étudiée. En effet, afin d’obtenir la réponse du transducteur uniquement, il est essentiel d’effectuer une calibration radiofréquence de la ligne d’acheminement du signal de façon à mathématiquement positionner les plans de référence aux ports d’entrée du transducteur. Cette calibration est possible avec des équipements de calibration cryogénique, ou par une calibration SOLT (Short-Open-Load-Thru) ou TRL (Thru-Reflect-Load) mécanique. Cette dernière, bien qu’inefficace en termes de temps, est possible en supposant peu de variabilité entre chaque refroidissement ou en température des différentes composantes. Une autre alternative serait de développer des capacités de calibration électronique cryogénique. Pour les meilleurs résultats, une seconde calibration pourrait être complétée de façon à positionner les plans de référence de la mesure à l’entrée du transducteur plutôt qu’à ses connecteurs. Bien que ce ne fût pas nécessaire pour une preuve de concept, cette calibration sera essentielle pour le développement d’un produit commercial.

De plus, l’optimisation de la chaîne d’amplification en termes d’ordre des différentes composantes doit être étudiée. La séquence optimale à partir de la réception du signal à détecter (soit la sortie du résonateur) est de positionner un amplificateur faible bruit avant tout élément atténuant le signal (filtres, circulateurs, coupleur directionnel, etc.), suivi des composantes nécessaires. De plus, les amplificateurs subséquents verront leurs exigences de niveaux de bruit diminué. Ainsi, l’optimisation entre le bruit thermique au transducteur et le signal sur bruit de l’instrument de mesure doit être considéré.

6.1.2 Résonateur

L’aspect le plus important des optimisations futures est le développement d’un meilleur transducteur et son intégration au système de mesure. Les avenues d’optimisations et les modifications proposées dans cette section permettront d’augmenter le signal magnétométrique, ainsi que d’améliorer la sensibilité et la résilience du transducteur aux différentes sources de bruits.

Comme discuté à la section 1.2, les détecteurs de résonance magnétique gagnent en

sensibilité lorsqu'ils opèrent en mode de réflexion et lorsque leur facteur de qualité est élevé. Cependant, un certain compromis existe entre le facteur de qualité et la réactivité du résonateur. Ainsi, la prochaine itération devra être conçue de façon à augmenter le facteur de qualité sans compromettre le temps de réponse du résonateur face aux phénomènes temporels d'ensembles de spins étudiés.

De plus, suite à des analyses d'éléments finis où le champ magnétique d'un ensemble de spins polarisé a été simulé par Léo Desormier lors d'un stage auprès du projet, il a été confirmé qu'une grande concentration de champ magnétique perpendiculaire se trouve aux extrémités d'un échantillon à mesurer. Ainsi, afin d'optimiser la sensibilité de la mesure, il est nécessaire de placer le bord de l'échantillon, plutôt que son centre, près du centre du conducteur central du résonateur.

Finalement, le signal magnétométrique est fortement dépendant de l'inductance cinétique du transducteur. Ainsi, des avenues d'optimisation sont l'amincissement du film et l'optimisation géométrique du guide d'ondes à ce que le ratio de participation de l'inductance cinétique soit importante.

Considérations de vortex

Finalement, le volet d'optimisation future le plus important est tout ce qui concerne les vortex. Ce volet couvre autant l'optimisation de la sensibilité du transducteur que sa résilience au bruit du mouvement de vortex.

Tout d'abord, comme discuté à la section 3.2, la présence de vortex modifie l'inductance cinétique ce qui modifie à son tour la tangente de la fonction de la fréquence du résonateur sous l'effet d'un champ magnétique perpendiculaire. Cette tangente est directement proportionnelle à la sensibilité du résonateur. L'optimisation de cette sensibilité se fera au coût de plusieurs compromis. Par exemple, le facteur de qualité du résonateur est compromis par l'addition de pertes résistive associée aux vortex. De plus, l'augmentation de la quantité de vortex augmente la susceptibilité du résonateur au bruit de vortex causé par le glissement de vortex et la circulation de flux.

Par contre, une solution à l'augmentation du bruit de vortex et de la diminution de son facteur de qualité est d'augmenter la force d'épinglement, empêchant ceux-ci de voyager dans le transducteur. Une méthode existante est l'ajout de centres d'épinglements sous forme de défauts dans le matériau supraconducteur, ou simplement, l'ajout de trous dans celui-ci. Ces derniers, ajoutés dans les plans de masse du guide d'onde coplanaire permettent l'opération de résonateur supraconducteur à fort champ magnétique perpendiculaire [72, 73].

6.2 Perspectives

La technologie présentée dans ce travail offre un potentiel unique vers une avenue de développement d'outils spécialisés d'exploration et de caractérisation de systèmes magnétiques tels que les ensembles de spins complexes, les études de surface et tout autre système démontrant des caractéristiques magnétiques.

L'avenue entreprise fut la résonance paramagnétique électronique d'un ensemble de spins où deux défauts cristallins ont été étudiés, soit les centres NV ainsi que les centres C de type P1 dans le diamant. Ces études préliminaires du phénomène du couplage magnétométrique indiquent un potentiel futur de cette technologie à l'application d'outil de mesure.

Effectivement, ces travaux ouvrent une nouvelle voie d'exploration dans le domaine de magnétométrie supraconductrice. Cette science est principalement connue pour le succès fulgurant des dispositifs SQUIDS (Superconducting Quantum Interference Device) comme magnétomètre ultra sensible en imagerie ou encore comme outil de calibration de circuits informatique supraconducteurs dans le domaine de l'information quantique. Cependant, cette science contient aussi d'autres candidats tels que certains dispositifs où un champ magnétique module la résistivité résiduelle d'un supraconducteur, ou encore une simple bobine réceptrice supraconductrice [74].

Le transducteur présenté ouvre ainsi la porte à une nouvelle avenue de cette science où la conception d'un circuit supraconducteur puisse permettre le développement de magnétomètres hautement spécialisés. Par exemple, tel que pour la conception d'antennes, de filtres ou autres composantes coplanaires pour le domaine des télécommunications, l'exploration de matériaux spécifiques, de géométries exotiques et d'optimisation de l'environnement électromagnétique du transducteur pourrait mener à la réalisation d'outils magnétométriques spécifique à une application précise.

Un exemple est la capacité du détecteur présenté d'opérer à des champs magnétiques transverses importants, soit une application où l'opération des magnétomètres SQUIDS est limitée.

De plus, comme discuté, le dispositif de détection peut aussi faire partie intégrale du système conçu : le transducteur proposé sert à la fois de cavité d'amplification permettant la prise de mesure RPE résonante, d'antenne permettant l'excitation RPE, ainsi que source d'amplification de signal où le facteur de qualité du résonateur dicte la sensibilité de la mesure magnétométrique. Il est ainsi possible d'imaginer une implémentation similaire où une géométrie non triviale est utilisée afin d'incorporer différentes composantes du circuit à

même le transducteur.

Mesure entamées

Comme mentionné à maintes reprises, suite à la découverte de l'application de cette technologie à la résonance paramagnétique électronique, l'équipe de chercheurs menant l'exploration initiale ont entamé des mesures de protection de propriétés intellectuelles dans l'éventualité de la poursuite du projet à une étape de développement menant à une commercialisation.

Conclusion

Les méthodes de résonances magnétiques sont de puissants outils de caractérisation de matériaux dans plusieurs domaines techno-scientifiques, chacun nécessitant une instrumentation particulière et offrant un avantage pour certaines manipulations et des limitations pour d'autres. Un exemple d'une telle limitation, pour les systèmes RPE en cavité utilisés pour la caractérisation de matériaux quantiques, est la restriction de l'observation à une plage d'observation fréquentielle très mince autour de la fréquence de la cavité.

Ce mémoire a présenté une approche hybride à ce type d'instrumentation où un système RPE en cavité cryogénique est capable d'étendre la fenêtre d'observation sur une très grande plage fréquentielle. Le résonateur supraconducteur utilisé permet d'effectuer une mesure RPE standard en cavité lorsque la condition de résonance avec une transition électronique est satisfaite. De plus, sa propriété de haute inductance cinétique et sa sensibilité au champ magnétique perpendiculaire permettent d'effectuer une mesure directe de la magnétisation de l'ensemble de spins, indépendamment de la fréquence de transition de ce dernier.

D'abord, une théorie de la réponse du transducteur en champ magnétique d'orientation est utilisée pour décrire les résultats expérimentaux. Cette théorie prend en compte la géométrie du résonateur, ses matériaux, ainsi que la présence de vortex dans la surface supraconductrice.

Par la suite, une simple expérience RPE en cavité est utilisée pour caractériser et identifier les ensembles de spins dans l'échantillon étudié (centres NV et centres P1). Cette caractérisation a permis d'identifier le temps de relaxation T_2 de ces systèmes, dans l'ordre de la dizaine de nanosecondes. De plus, ces expériences ont permis la caractérisation du couplage dispersif par la régression de la modulation de la largeur de bande du résonateur.

En outre, les mesures non résonantes démontrent des signaux significativement plus grands que ceux attendus par un couplage uniquement dispersif. Un gain de signal spectroscopique fut mesuré à 12.7 fois la contribution dispersive de la transition $|g\rangle \rightarrow |f\rangle$ des centres NV.

Ce résultat est un très bon indicateur de l'avantage magnétométrique du transducteur par rapport au couplage dispersif.

De plus, une série de mesures sont complétées pour bonifier le degré de confiance envers le couplage proposé. La contribution du signal dispersif au signal mesuré est extraite d'une série de mesure RPE hors-résonante à plusieurs décalages résonance - transition électronique. À partir de ces données, la force de couplage d'une espèce de centres NV est estimée à 2% près de la valeur extraite par mesure résonante. Finalement, une démonstration des capacités du transducteur est démontrée par la reconstruction du diagramme de transition électronique des deux ensembles étudiés sur une plage de 5.4 GHz autour de la résonance à 4.91 GHz .

Cette démonstration est particulièrement intéressante puisqu'elle inspire immédiatement les applications de la technologie : simplifier l'exploration de nouveaux matériaux et nouveaux phénomènes à caractère magnétique. Des avenues d'optimisation futures sont suggérées telles que l'ajout de défauts artificiels dans le supraconducteur afin de limiter les effets néfastes de vortex, ou encore l'augmentation du facteur de qualité du résonateur afin de diminuer le signal minimal détectable.

Annexe A

Modélisation d'un guide d'ondes coplanaire

Un résonateur de type guide d'ondes coplanaire n'est réellement qu'une implémentation spécifique d'une ligne à transmission de longueur finie chargée par un condensateur en série avec circuit Thévenin représentant le circuit de mesure à l'entrée et à la sortie. Ainsi, il est adéquat d'utiliser le modèle traditionnel du télégraphe tel qu'illustré à la figure A.1. L'inductance L' (où l'apostrophe indique la description par unité de longueur) et la résistance R' du conducteur central représentant les fluctuations de voltages dans la ligne tandis que le condensateur C' et la conductance G' du diélectrique imparfait contribuent aux fluctuations de courants, d'où les équations du télégraphe [47] :

$$\frac{dV}{dz} = -Z'I = -(R' + j\omega L')I \quad (\text{A.1})$$

$$\frac{dI}{dz} = -Y'V = -(G' + j\omega C')V \quad (\text{A.2})$$

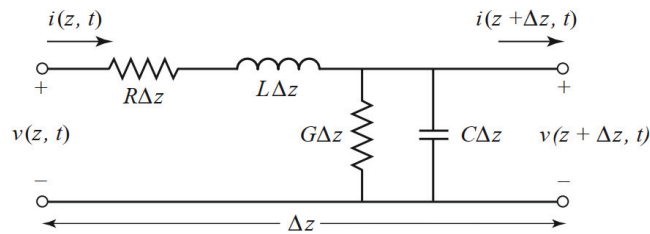


Figure A.1 Circuit équivalent d'un guide d'ondes coplanaire selon le modèle du télégraphe.

Résolvant ce système d'équations, le courant et le voltage prennent la forme d'ondes progressives $V(z) = V_i e^{-\gamma z} + V_r e^{\gamma z}$ avec une constante de propagation $\gamma = \alpha + j\beta$. Dans l'approximation de faibles pertes, l'impédance caractéristique de la ligne à transmission est décrite par $Z_o = \sqrt{L'/C'}$ et les angles de pertes peuvent être associés aux éléments R' et G' par les équations :

$$R' \approx 2Z_o \alpha_c \quad (\text{A.3})$$

$$G' \approx 2\alpha_d / Z_o \quad (\text{A.4})$$

Cependant, il est nécessaire de faire la distinction entre l'impédance caractéristique Z_o représentant l'impédance d'une seule onde progressive dans une seule direction. L'impédance générale est définie par le ratio du voltage et du courant dans la ligne. Ainsi, cette définition dépend de la charge attachée à la ligne de transmission, laquelle peut être d'impédance caractéristique Z_L différente résultant en une réflexion du signal. L'impédance d'entrée est donc :

$$Z_{in} = Z_o \frac{Z_L \cosh(\gamma l) + j Z_o \sinh(\gamma l)}{Z_o \cosh(\gamma l) + j Z_L \sinh(\gamma l)} \quad (\text{A.5})$$

A.1 Description de la réponse du résonateur

Une description complète du résonateur compatible avec une description similaire du reste du circuit de mesure est importante afin de bien comprendre les interactions avec les différentes composantes. Les paramètres ABCD d'un système quadripôle décrivent le ratio de voltages (A), le ratio de courants (D), l'impédance (B) et l'admittance (C) d'un élément de circuit. Un avantage de ce formalisme est sa capacité de décrire un système complexe par le produit des matrices correspondant à chacun de ses éléments. Ainsi, le système de résonateur de type d'onde coplanaire chargé par un condensateur de couplage c_c est décrit par le produit des matrices $M_c M_r M_c$ où M_c et M_r correspondent au condensateur de couplage et au résonateur :

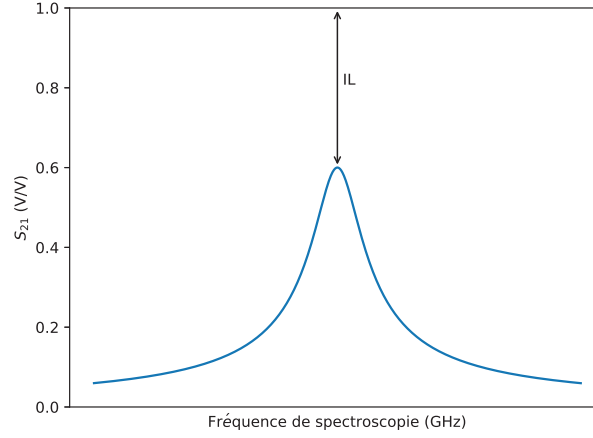


Figure A.2 Exemple de la transmission d'un résonateur et pertes d'insertion.

$$M_{r,L} = M_{C_c} M_r M_{C_c} = \begin{pmatrix} A & B \\ C & D \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & \frac{1}{j\omega C_c} \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cosh(\gamma l) & Z_o \sinh(\gamma l) \\ Z_o^{-1} \sinh(\gamma l) & \cosh(\gamma l) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & \frac{1}{j\omega C_c} \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (\text{A.6})$$

Finalement, ces paramètres peuvent être transformés vers la description de paramètres S, laquelle est particulièrement intéressante puisqu'elle correspond aux types de mesures complétés lors des expériences futures. Les paramètres S pour Scattering décrivent les coefficients de diffraction des ondes provenant de chacun des ports d'un système double port. Une matrice 2x2 décrit complètement le régime permanent du système par le coefficient de réflexion S_{ii} au port i ainsi que les coefficients de transmission S_{ij} du port j au port i . Par exemple, avec une charge symétrique aux deux ports $Z_L = R_L + jX_L$, le coefficient de transmission est [6] :

$$S_{21} = \frac{2(AD - BC)R_L}{AZ_L + B + CZ_L^2 + DZ_L} \quad (\text{A.7})$$

A.2 Effet du champ magnétique sur une mince couche supraconductrice : densité de courant non uniforme

Une théorie de l'interaction magnétique d'un supraconducteur est présentée : conceptualisée par Brandt [41], celle-ci tente de calculer la densité de courant dans une bande d'une mince couche supraconductrice et la variation de celle-ci, lorsque sujette à un champ magnétique perpendiculaire. La théorie considère un courant de transport parallèle au long axe de la bande supraconductrice, dont la densité de courant est fortement localisée aux bords tel qu'attendu dans un conducteur normal de la même géométrie. Le point important de la théorie de Brandt provient d'une limitation d'un maximum de densité de courant J_c , où il est énergiquement avantageux pour le système d'augmenter le courant au centre du supraconducteur plutôt que de dépasser ce courant critique.

Ainsi, lorsqu'un champ magnétique est appliqué, un courant Meissner circule aux frontières du supraconducteur afin d'expulser le champ magnétique à son centre. Par contre, puisque le courant au bord de la bande est déjà saturé, la largeur de la zone saturée augmente à une extrémité et diminue à une autre. Ainsi, la non-uniformité de la distribution de courant augmente avec la force du champ magnétique appliqué.

Le formalisme proposé par Brandt résout le courant du supraconducteur selon la relation densité de courant et le champ électrique $\mathbf{E} = f(\mathbf{J}, \mathbf{B})$. Cependant, plusieurs non-linéarités sont considérées : le champ électrique local dans le conducteur est composé de deux parties, soit le terme associé aux vortex $\mathbf{E}_v = \rho_v(J, B)\mathbf{J}$ (voir section 2.1.3) et le terme Meissner donné par l'équation de London (eq. 2.1-2.2) :

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_v(\mathbf{J}, \mathbf{B}) + \mu_0 \lambda^2 \frac{d\mathbf{j}}{dt} \quad (\text{A.8})$$

Puisque le terme de vortex est usuellement non linéaire, la solution du courant est trouvée par itération numérique temporelle. Cette intégrale est calculée en considérant le vecteur potentiel magnétique $\mathbf{A} = \mathbf{A}_a + \mathbf{A}_j$: ce premier terme contient l'information du champ magnétique appliqué en plus du courant de transport via le champ électrique appliqué :

$$\mathbf{A}_a = \mathbf{A}_a^B + \mathbf{A}_a^E \quad (\text{A.9})$$

$$\mathbf{B}_a = \nabla \times \mathbf{A}_a^B \quad (\text{A.10})$$

$$\mathbf{E}_a = -\frac{d\mathbf{A}_a^E}{dt} \quad (\text{A.11})$$

Similairement, le vecteur potentiel magnétique voit la contribution de la distribution de courant décrite par $\mathbf{A}_j \mathbf{r} = \mu_0 \int d^3 r' \mathbf{j}(\mathbf{r}') / 4\pi |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|$. Consirérant un système le long de $\hat{\mathbf{z}}$ et où le courant et le potentiel magnétique est constant le long du conducteur $\mathbf{j} = j(x, y) \hat{\mathbf{z}}$, en intégrant le long de cet axe, l'on obtient :

$$A_j(\mathbf{r}) = \int d^2 r' j(\mathbf{r}') Q(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \quad (\text{A.12})$$

où $Q(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ est un noyau intégral décrit par la géométrie étudiée.

Finalement, en insérant $\mathbf{E} = -\dot{\mathbf{A}}$ dans l'équation A.8, l'équation de mouvement de la densité de courant est déterminée :

$$\mu_o \frac{dj(\mathbf{r}, t)}{dt} = - \int d^2 r' K(\mathbf{r}, \mathbf{r}') [E_v(j, B) + \dot{A}_a(\mathbf{r}, t)] \quad (\text{A.13})$$

où $K(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = [Q(\mathbf{r}, \mathbf{r}') + \lambda^2 \delta_2(\mathbf{r} - \mathbf{r}')]^{-1}$ est le noyau intégral inverse décrit par la géométrie étudiée et la longueur de pénétration adéquate.

La simulation numérique est complétée par une discrétisation non uniforme de la surface d'intérêt de sorte que les non-linéarités attendues près des frontières soient calculées avec plus grande précaution.

Ensuite, à partir de cette distribution de courant non uniforme, il est possible de déterminer l'inductance de la bande par une discrétisation de la densité du courant $J(x_i) = J_i dx$ et le calcul de l'énergie magnétique de chacun de ces éléments.

Hoer et Love [9] ont développé une solution exacte pour la détermination de l'inductance effective d'un conducteur de forme et de distribution arbitraire. Ce modèle consiste à discrétiser le conducteur en sections de courant uniforme et de géométries rectangulaires et ensuite de calculer l'énergie magnétique totale comme la somme de l'énergie de chacun de ces éléments $W_{\text{tot}} = \frac{1}{2} \mu_o L_{\text{eff}} I_{\text{tot}}^2 = \sum W_n$. L'objet principal de la proposition est donc la substitution de

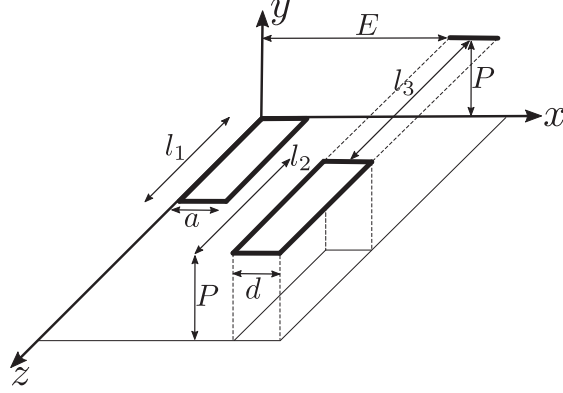


Figure A.3 Schéma représentant la géométrie étudiée pour calculer l'inductance mutuelle de deux éléments discrets d'un film conducteur, Figure tirée de Hoer et Love [9].

l'inductance mutuelle $M = \frac{1}{I_1 I_2} \int_{A_1} \int_{A_2} M_{12} J_1 J_2 dA_1 dA_2$ où $M_{12} = \mu_o \int_{l_1} \int_{l_2} \frac{dl_1 \cdot dl_2}{r}$ par une somme de parties précalculées pour différentes formes rectangulaires.

La géométrie d'intérêt est deux couches minces parallèles telles qu'illustrées à la figure A.3 et où $l_1 = l_2 = l$, $a = d$, $l_3 = P = 0$, l'inductance mutuelle exacte est donnée par :

$$M_t = \frac{\mu_o}{2d} \left[\left[\frac{x^2}{2} z \ln(z+v) + \frac{z^2}{2} x \ln(x+v) - \frac{v^3}{6} \right]_{E,E}^{E-d, E+d}(x) \right]_{0,0}^{-l,l}$$

$$v = \sqrt{x^2 + z^2}$$

et où

$$[[f(x, z)]_{q_2, q_4}^{q_1, q_3}(x)]_{s_2, s_4}^{s_1, s_3}(z) = \sum_{i=1}^4 \sum_{k=1}^4 (-1)^{i+k} f(q_i, s_k) \quad (\text{A.14})$$

Similairement, lorsque la distance entre les deux éléments est de zéro ($E=0$), l'inductance d'un seul élément est décrite par :

$$L = \frac{\mu_o}{3d^2} (3d^2 l \ln(\frac{l+v}{d}) + 3l^2 d \ln(\frac{a+v}{l}) - v^3 + l^3 + d^3)$$

$$v = l\sqrt{l^2 + d^2}$$

À ce résultat d'inductance magnétique s'ajoute le terme d'inductance cinétique pour un courant non uniforme [75] :

$$L_k = \mu_p \lambda^2 l \int J^2(r) dS / [\int J(r) dS]^2 \quad (\text{A.15})$$

Un fait intéressant de cette théorie semble indiquer qu'une partie de la dépendance en champ magnétique de la fréquence d'un résonateur provient d'une conséquence du courant Meissner plutôt que directement de l'inductance cinétique.

Bibliographie

- [1] H. M. Assenheim, *Introduction to Electron Spin Resonance*, 1st ed. Springer US, 1966. x, 4, 9, 13, 44
- [2] J. A. Weil and J. R. Bolton, *Electron paramagnetic resonance : elementary, theory and practical applications*, 2nd ed. Wiley Interscience, 2007. x, 4, 9, 14, 16
- [3] A. A. Snarskii, I. V. Bezsudnov, V. A. Sevryukov, A. Morozovskiy, and J. Malinsky, *Percolation-Similar Description of Abrikosov Vortex*. New York, NY : Springer New York, 2016, pp. 265–274. [Online]. Available : https://doi.org/10.1007/978-1-4419-8291-9_21 x, 24
- [4] M. Tinkham, *Introduction to superconductivity*, 2nd ed. Dover Publications, 2015. x, 19, 21, 23, 25, 26
- [5] J. Gao, “The physics of superconducting microwave resonators,” Ph.D. dissertation, California Institute of Technology, 2008. x, 29
- [6] M. Göppl, A. Fragner, M. Baur, R. Bianchetti, S. Filipp, J. M. Fink, P. J. Leek, G. Puebla, L. Steffen, and A. Wallraff, “Coplanar waveguide resonators for circuit quantum electrodynamics,” *Journal of Applied Physics*, vol. 104, no. 11, p. 113904, 2008. [Online]. Available : <https://doi.org/10.1063/1.3010859> x, 31, 32, 91
- [7] J. R. Clem and M. W. Coffey, “Radio-frequency surface impedance of type-ii superconductors : Dependence upon the magnitude and angle of an applied static magnetic field,” *Physica C : Superconductivity*, vol. 185-189, pp. 1915 – 1916, 1991. [Online]. Available : <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/092145349191083G> xi, 36, 37
- [8] D. Lachance-Quirion, “Dispositif quantiques hybrides basés sur les systèmes de spins et les circuits supraconducteurs,” Ph.D. dissertation, Université de Sherbrooke, 2018. xi, 1, 2, 36, 47, 48, 49, 58, 67, 68
- [9] C. Hoer and C. Love, “Exact inductance equations for rectangular conductors with applications to more complicated geometries,” *Journal of Research of the National Bureau of Standards, Section C : Engineering and Instrumentation*, vol. 69C, no. 2, p. 127, 1965. xii, 93, 94
- [10] Fraunhofer-Gesellschaft, “Quantum magnetometers for industrial applications,” Apr 2019. [Online]. Available : <https://phys.org/news/2019-04-quantum-magnetometers-industrial-applications.html> 1
- [11] Gemsys, “Advanced quantum magnetometer technologies,” June 2019. [Online]. Available : <http://www.gemsys.ca/advanced-quantum-magnetometer-technologies> 1
- [12] PicoQuant, “Photon counting and timing.” [Online]. Available : <https://www.picoquant.com/products/category/photon-counting-instrumentation> 1
- [13] I. Quantique, “An overview of photon counting modules from idq.” [Online]. Available : <https://www.idquantique.com/single-photon-systems/products/> 1

- [14] X. Lu, Q. Li, D. A. Westly, G. Moille, A. Singh, V. Anant, and K. Srinivasan, “Chip-integrated visible-telecom entangled photon pair source for quantum communication,” *Nature Physics*, vol. 15, no. 4, pp. 373–381, 2019. [Online]. Available : <https://doi.org/10.1038/s41567-018-0394-3> 1
- [15] Q. LLC, “Towards unconditionally secure communications.” [Online]. Available : <http://quconn.com/our-technology/> 1
- [16] M. Padgett, E. Toninelli, T. Gregory, and P.-A. Moreau, “Beating classical imaging limits with entangled photons,” 2019. [Online]. Available : <https://doi.org/10.1117/12.2515497> 1
- [17] J. P. Dowling, “Quantum lidar - remote sensing at the ultimate limit,” Defense Advanced Research Projects Agency, East Lansing, Michigan, Tech. Rep. ADA502521, July 2009, final rept. Jul 2007-Dec 2008. [Online]. Available : <https://apps.dtic.mil/docs/citations/ADA502521> 1
- [18] “Quantum.” [Online]. Available : <https://ai.google/research/teams/applied-science/quantum-ai/> 1
- [19] IBM, “Ibm q - quantum computing,” Jun 2018. [Online]. Available : <https://www.research.ibm.com/ibm-q/> 1
- [20] Intel, “Quantum computing.” [Online]. Available : <https://www.intel.com/content/www/us/en/research/quantum-computing.html> 1
- [21] Y. Kubo, F. R. Ong, P. Bertet, D. Vion, V. Jacques, D. Zheng, A. Dréau, J.-F. Roch, A. Auffeves, F. Jelezko, J. Wrachtrup, M. F. Barthe, P. Bergonzo, and D. Esteve, “Strong coupling of a spin ensemble to a superconducting resonator,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 105, p. 140502, Sep 2010. [Online]. Available : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.105.140502> 1
- [22] U. Holzgrabe, B. W. Diehl, and I. Wawer, “Nmr spectroscopy in pharmacy,” *Journal of Pharmaceutical and Biomedical Analysis*, vol. 17, no. 4, pp. 557 – 616, 1998. [Online]. Available : <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0731708597002768> 4
- [23] P. R. L. Markwick, T. Malliavin, and M. Nilges, “Structural biology by nmr : Structure, dynamics, and interactions,” *PLOS Computational Biology*, vol. 4, no. 9, pp. 1–7, 09 2008. [Online]. Available : <https://doi.org/10.1371/journal.pcbi.1000168> 4
- [24] E. Bayram, J. Z. Caldwell, and S. J. Banks, “Current understanding of magnetic resonance imaging biomarkers and memory in alzheimer’s disease,” *Alzheimer’s and Dementia : Translational Research and Clinical Interventions*, vol. 4, pp. 395 – 413, 2018. [Online]. Available : <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S2352873718300258> 4
- [25] S. Struyve, “Introduction to broadband fmr spectroscopy,” *Spectrum*, vol. 26, 11 2017. [Online]. Available : <https://lot-qd.be/en/news/product-application-news-spectrum/international-spectrum-e26/introduction-to-broadband-fmr-spectroscopy/> 5
- [26] S. V. S. V. Vonsovskii, *Ferromagnetic resonance ; the phenomenon of resonant absorption of a high-frequency magnetic field in ferromagnetic substances*, 1st ed., ser. International series of monographs on solid state physics. Pergamon Press, 1966, vol. 4. 5
- [27] M. Poggio and C. L. Degen, *Magnetic Resonance Force Microscopy*. Dordrecht : Springer Netherlands, 2012, pp. 1256–1264. [Online]. Available : https://doi.org/10.1007/978-90-481-9751-4_40 5
- [28] C. P. Poole, *Electron spin resonance : a comprehensive treatise on experimental techniques*. John Wiley and Sons, 1983. 9, 15
- [29] P. J. Roberts, “Epr relaxation : Progress in hardware and analysis methods,” Ph.D. dissertation, University of Nottingham, 2014. 9, 16
- [30] S. Tamaru, K. Yakushiji, A. Fukushima, S. Yuasa, and H. Kubota, “Ultrahigh sensitivity ferromagnetic resonance measurement based on microwave interferometer,” *IEEE Magnetism Letters*, vol. 5, pp. 1–4, 2014. 12

- [31] F. Bloch, "Nuclear induction," *Phys. Rev.*, vol. 70, pp. 460–474, Oct 1946. [Online]. Available : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.70.460> 12
- [32] H. Günther, *NMR spectroscopy : basic principles, concepts, and applications in chemistry*, 3rd ed. Wey-VCH, 2013. 16
- [33] J. Bardeen, "Two-fluid model of superconductivity," *Physical Review Letters*, vol. 1, no. 11, p. 399–400, 1958. 19, 20
- [34] F. London and H. London, "The electromagnetic equations of the supraconductor," *Proceedings of the Royal Society of London. Series A - Mathematical and Physical Sciences*, vol. 149, no. 866, p. 71–88, Jan 1935. 19, 20
- [35] J. Bardeen, L. N. Cooper, and J. R. Schrieffer, "Theory of superconductivity," *Phys. Rev.*, vol. 108, pp. 1175–1204, Dec 1957. [Online]. Available : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.108.1175> 19
- [36] V. L. Ginzburg and L. D. Landau, "On the Theory of superconductivity," *Zh. Eksp. Teor. Fiz.*, vol. 20, pp. 1064–1082, 1950. 21
- [37] A. A. Abrikosov, "On the Magnetic properties of superconductors of the second group," *Sov. Phys. JETP*, vol. 5, pp. 1174–1182, 1957, [Zh. Eksp. Teor. Fiz.32,1442(1957)]. 22, 23
- [38] M. TINKHAM, "Consequences of fluxoid quantization in the transitions of superconducting films," *Rev. Mod. Phys.*, vol. 36, pp. 268–276, Jan 1964. [Online]. Available : <https://link.aps.org/doi/10.1103/RevModPhys.36.268> 23
- [39] G. Gurp, van, "Flux motion and noise in superconductors," Ph.D. dissertation, Technische Hogeschool Eindhoven, 1969, proefschrift. 25
- [40] A. M. Campbell and J. E. Evetts, "Flux vortices and transport currents in type ii superconductors," *Advances in Physics*, vol. 50, no. 8, pp. 1249–1449, 2001. [Online]. Available : <https://doi.org/10.1080/00018730110102736> 25
- [41] E. H. Brandt, "Theory of type-ii superconductors with finite london penetration depth," *Phys. Rev. B*, vol. 64, p. 024505, Jun 2001. [Online]. Available : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.64.024505> 26, 92
- [42] A. C. Torrezan, T. P. Mayer Alegre, and G. Medeiros-Ribeiro, "Microstrip resonators for electron paramagnetic resonance experiments," *Review of Scientific Instruments*, vol. 80, no. 7, p. 075111, 2009. [Online]. Available : <https://doi.org/10.1063/1.3186054> 27
- [43] H. Malissa, D. I. Schuster, A. M. Tyryshkin, A. A. Houck, and S. A. Lyon, "Superconducting coplanar waveguide resonators for low temperature pulsed electron spin resonance spectroscopy," *Review of Scientific Instruments*, vol. 84, no. 2, p. 025116, 2013. [Online]. Available : <https://doi.org/10.1063/1.4792205> 27
- [44] L. Habêrlé, "Cavité micro=ondes è champ uniforme accordable en fréquence pour le contrôle cohérent d'ensembles de spins électroniques," Ph.D. dissertation, Université de Sherbrooke, 2019. 27, 42
- [45] J. R. Clem, "Inductances and attenuation constant for a thin-film superconducting coplanar waveguide resonator," *Journal of Applied Physics*, vol. 113, no. 1, p. 013910, 2013. [Online]. Available : <https://doi.org/10.1063/1.4773070> 29
- [46] K. Watanabe, K. Yoshida, T. Aoki, and S. Kohjiro, "Kinetic inductance of superconducting coplanar waveguides," *Japanese Journal of Applied Physics Regular Papers Short Notes and Review Papers*, vol. 33, pp. 5708–5712, oct 1994. 30
- [47] D. M. Pozar, *Microwave engineering*, 4th ed. Wiley, 2012. 30, 89
- [48] G. Ghione, "A cad-oriented analytical model for the losses of general asymmetric coplanar lines in hybrid and monolithic mics," *IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques*, vol. 41, no. 9, pp. 1499–1510, Sep. 1993. 30

- [49] A. Emmert, “ircuit-quantum electrodynamics (cqed) with superconducting flux qubits - design and fabrication of a microwave beam splitter,” Ph.D. dissertation, Technische Universität München, 2006. 31
- [50] P. P. P. P. Silvester, *Modern electromagnetic fields*. Prentice-Hall, 1968, includes bibliographies. 31
- [51] G. W. J., “Circuit duals on planar transmission media,” in *1983 IEEE MTT-S International Microwave Symposium Digest*, May 1983, pp. 154–156. 31
- [52] R. N. Simons and R. K. Arora, “Coupled slot line field components,” *IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques*, vol. 30, no. 7, pp. 1094–1099, Jul 1982. 33
- [53] D. Tran, “Modèle théorique unidimensionnel d’un résonateur excité supraconducteur,” Tech. Rep., 2019. 35
- [54] W. Rauch, E. Gornik, G. Sölkner, A. A. Valenzuela, F. Fox, and H. Behner, “Microwave properties of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ thin films studied with coplanar transmission line resonators,” *Journal of Applied Physics*, vol. 73, no. 4, pp. 1866–1872, 1993. [Online]. Available : <https://doi.org/10.1063/1.353173> 36
- [55] A. Valenzuela, G. Sölkner, J. Kessler, and P. Russer, “Microwave characterisation of structured $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ - thin films,” in *Synthesis and Characterization of High-Tc Superconductors*, ser. Materials Science Forum, vol. 130. Trans Tech Publications Ltd, 1 1993, pp. 349–372. 36
- [56] M. W. Coffey and J. R. Clem, “Theory of rf magnetic permeability of type-II superconductors in slab geometry with an oblique applied static magnetic field,” *Phys. Rev. B*, vol. 45, pp. 10 527–10 535, May 1992. [Online]. Available : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.45.10527> 36
- [57] R. Prozorov, R. W. Giannetta, N. Kameda, T. Tamegai, J. A. Schlueter, and P. Fournier, “Campbell penetration depth of a superconductor in the critical state,” *Phys. Rev. B*, vol. 67, p. 184501, May 2003. [Online]. Available : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.67.184501> 37
- [58] R. Labusch, “Calculation of the critical field gradient in type-II superconductors.” *Cryst. Lattice Defects 1 : 1-16(Dec 1969)*., 1 1969. 38
- [59] M. Tavis and F. W. Cummings, “Exact solution for an n -molecule—radiation-field hamiltonian,” *Phys. Rev.*, vol. 170, pp. 379–384, Jun 1968. [Online]. Available : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.170.379> 39
- [60] M. Boissonneault, J. M. Gambetta, and A. Blais, “Dispersive regime of circuit qed : Photon-dependent qubit dephasing and relaxation rates,” *Phys. Rev. A*, vol. 79, p. 013819, Jan 2009. [Online]. Available : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.79.013819> 40
- [61] Y. Tabuchi, S. Ishino, T. Ishikawa, R. Yamazaki, K. Usami, and Y. Nakamura, “Hybridizing ferromagnetic magnons and microwave photons in the quantum limit,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 113, p. 083603, Aug 2014. [Online]. Available : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.113.083603> 40
- [62] V. Y. Osipov, F. M. Shakhov, N. N. Efimov, V. V. Minin, S. V. Kidalov, and A. Y. Vul’, “Identification of paramagnetic nitrogen centers (p1) in diamond crystallites synthesized via the sintering of detonation nanodiamonds at high pressure and temperature,” *Physics of the Solid State*, vol. 59, no. 6, pp. 1146–1153, 2017. [Online]. Available : <https://doi.org/10.1134/S1063783417060191> 43
- [63] N. A. Poklonski, “Inversion of the epr signal from p1 centers in a synthetic diamond single crystal under normal conditions,” *Technical Physics Letters*, vol. 32, no. 4, pp. 309–311, Apr 2006. [Online]. Available : <https://doi.org/10.1134/S1063785006040109> 43

- [64] M. W. Doherty, N. B. Manson, P. Delaney, F. Jelezko, J. Wrachtrup, and L. C. Hollenberg, “The nitrogen-vacancy colour centre in diamond,” *Physics Reports*, vol. 528, no. 1, pp. 1 – 45, 2013, the nitrogen-vacancy colour centre in diamond. [Online]. Available : <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0370157313000562> 44
- [65] Y. Chu and M. D. Lukin, “Quantum optics with nitrogen-vacancy centers in diamond.” [Online]. Available : <https://arxiv.org/abs/1504.05990> 44, 45
- [66] M. Lesik, “Engineering of nv color centers in diamond for their applications in quantum information and magnetometry,” Ph.D. dissertation, Ecole Normale Supérieure de Cachan, 2015. 46
- [67] R. Schirhagl, K. Chang, M. Loretz, and C. L. Degen, “Nitrogen-vacancy centers in diamond : Nanoscale sensors for physics and biology,” *Annual Review of Physical Chemistry*, vol. 65, no. 1, pp. 83–105, 2014, pMID : 24274702. [Online]. Available : <https://doi.org/10.1146/annurev-physchem-040513-103659> 46
- [68] D. G. Blair and S. K. Jones, “A high-q sapphire loaded superconducting cavity resonator,” *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 20, no. 12, pp. 1559–1566, dec 1987. 47
- [69] J. Eisenstein, “Superconducting elements,” *Rev. Mod. Phys.*, vol. 26, pp. 277–291, Jul 1954. [Online]. Available : <https://link.aps.org/doi/10.1103/RevModPhys.26.277> 47
- [70] H. T. Friis, “A note on a simple transmission formula,” *Proceedings of the IRE*, vol. 34, no. 5, pp. 254–256, May 1946. 53
- [71] K. Technologies, “De-embedding and embedding s-parameter networks using a vector network analyzer.” 83
- [72] R. Wördenweber, “Engineering of superconductors and superconducting devices using artificial pinning sites,” *Physical Sciences Reviews*, vol. 2, no. 8, 2017. 84
- [73] J. Kroll, F. Borsoi, K. van der Enden, W. Uilhoorn, D. de Jong, M. Quintero-Pérez, D. van Woerkom, A. Bruno, S. Plissard, D. Car, E. Bakkers, M. Cassidy, and L. Kouwenhoven, “Magnetic-field-resilient superconducting coplanar-waveguide resonators for hybrid circuit quantum electrodynamics experiments,” *Phys. Rev. Applied*, vol. 11, p. 064053, Jun 2019. [Online]. Available : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevApplied.11.064053> 84
- [74] B. F. Kim, J. Bohandy, F. J. Adrian, and K. Moorjani, “Superconducting magnetometer,” *Applied Physics Letters*, vol. 56, no. 20, pp. 2037–2038, 1990. [Online]. Available : <https://doi.org/10.1063/1.103010> 85
- [75] J. W. Baker, J. D. Lejeune, and D. G. Naugle, “Effects of a nonuniform current distribution on the kinetic inductance of a thin superconducting film,” *Journal of Applied Physics*, vol. 45, no. 11, pp. 5043–5049, 1974. [Online]. Available : <https://doi.org/10.1063/1.1663181> 95